



Méthodes morphologique et par éléments finis combinées pour une nouvelle approche de la modélisation 3D du dépôt par projection dynamique par gaz froid (“ cold spray ”)

Francesco Delloro

► To cite this version:

Francesco Delloro. Méthodes morphologique et par éléments finis combinées pour une nouvelle approche de la modélisation 3D du dépôt par projection dynamique par gaz froid (“ cold spray ”). Matériaux. Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2015. Français. NNT : 2015ENMP0017 . tel-01216759

HAL Id: tel-01216759

<https://pastel.archives-ouvertes.fr/tel-01216759>

Submitted on 16 Oct 2015

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

École doctorale n°432 : Sciences des Métiers de l'Ingénieur

Doctorat ParisTech

THÈSE

pour obtenir le grade de docteur délivré par

l'École nationale supérieure des mines de Paris

Spécialité Sciences et Génie des Matériaux

présentée et soutenue publiquement par

Francesco DELLORO

le 8 juillet 2015

**Méthodes morphologique et par éléments finis combinées pour une
nouvelle approche de la modélisation 3D du dépôt par projection
dynamique par gaz froid (« cold spray »)**

**A new approach to 3D modeling of the cold spray process,
combining morphological methods and finite element simulations**

Directeurs de thèse : **Michel JEANDIN**
Dominique JEULIN

Jury :

Mme. Armelle VARDELLE , Professeur, Université de Limoges	Rapporteur
M. Thierry COUPEZ , Professeur, Ecole Centrale de Nantes	Rapporteur
M. Bertrand JODOIN , Professeur, University of Ottawa	Président
Mme. Sophie COSTIL , HDR, Université de Technologie de Belfort-Montbéliard	Examineur
M. Luc BIANCHI , Docteur, CEA DAM Le Ripault	Examineur
M. Dominique JEULIN , Directeur de Recherche, CMM - MINES ParisTech	Examineur
M. Michel JEANDIN , Directeur de Recherche, CdM - MINES ParisTech	Examineur
M. Erick MEILLOT , Docteur, CEA DAM Le Ripault	Invité

**T
H
È
S
E**

Table des matières

I	Eléments bibliographiques	5
I.1	Projection dynamique par gaz froid (« cold spray »)	5
I.2	Microtomographie par rayons X	7
I.3	Caractérisation morphologique	9
I.4	Simulations d'impacts	10
I.5	Propriétés des matériaux	14
I.6	Simulations d'empilement	14
II	Matériaux et procédés	19
II.1	Matériaux de l'étude	19
II.2	Mesures de dureté	19
II.3	Granulométrie laser	19
II.4	Microtomographie et laminographie	20
II.5	Bases et méthodes de l'analyse d'image	21
II.6	Projection par cold spray	23
II.6.1	Installation de dépôt	23
II.6.2	Mesure des vitesses des particules en vol	25
II.7	Coulage en bande	25
II.8	Dépôt chimique en phase vapeur sur lit fluidisé	25
III	Etude morphologique 3D de la poudre	27
III.1	Introduction	27
III.2	Observations préliminaires	28
III.3	Données microtomographiques	29
III.4	Construction d'une bibliothèque 3D des particules de poudre	30
III.4.1	Algorithme de traitement	31
III.4.2	Séparation des agrégats	31
III.5	Classification des particules dans la bibliothèque	33
III.5.1	Mesures morphologiques	33
III.5.2	Comparaison avec la granulométrie laser (GL)	36
III.5.3	Corrélations entre mesures	37
III.5.4	Analyse en composantes principales	37
III.5.5	Partitionnement de données (« Cluster analysis »)	40
III.5.6	Présentation du classement	41
III.6	Conclusions	48
IV	Simulations par éléments finis	51
IV.1	Introduction	51
IV.2	Phénoménologie des impacts	51
IV.3	Physique du modèle	53
IV.3.1	Couplage thermomécanique	53

IV.3.2	Elasticité et onde de choc	54
IV.3.3	Visco-plasticité (« Johnson-Cook »)	55
IV.3.4	Frottement	56
IV.3.5	Paramètres des matériaux	57
IV.4	Logiciel et outils	57
IV.4.1	Remaillage ALE	59
IV.4.2	Suivi de matière	59
IV.4.3	Ecoulement	60
IV.4.4	Résumé des hypothèses	60
IV.4.5	Bilan énergétique et remaillage	61
IV.5	Simulations 2D	63
IV.5.1	Modèle plan et axisymétrique	63
IV.5.2	Effet de la taille de maillage	63
IV.5.3	Effet des paramètres de frottement	66
IV.5.4	Effet de la forme des particules : ellipses	68
IV.5.5	Effet de la rugosité du substrat	70
IV.5.6	Estimation de l'écoulement	72
IV.6	Mesures de vitesse	74
IV.7	Estimation des paramètres de frottement	75
IV.8	Simulation 3D	79
IV.8.1	Passage au 3D	79
IV.8.2	Remaillage	79
IV.8.3	Simulation des particules réelles	80
IV.8.3.1	Sélection des paramètres expérimentaux	81
IV.8.3.2	Maillage	82
IV.8.3.3	Résultats	82
IV.9	Conclusions	86
V	Modèle d'empilement	87
V.1	Introduction	87
V.2	Homogénéité du dépôt	87
V.3	Simulations	90
V.4	Modèle d'empilement I	90
V.4.1	Modèle à déplacements verticaux	91
V.4.2	Résultats des simulations à déplacements verticaux	92
V.5	Utilisation complète des résultats des simulations EF	93
V.5.1	Traitement des données en sortie des simulations EF	93
V.5.2	Méthodes d'interpolations	94
V.5.2.1	Interpolation polynomiale	95
V.5.2.2	Triangulation	97
V.6	Modèle d'empilement II	98
V.6.1	Approche discrétisée	99
V.6.2	Approche vectorielle	101
V.7	Conclusion	105
VI	Validation des simulations d'impact	107
VI.1	Introduction	107
VI.2	Splats de Ta sur Cu	107
VI.2.1	Microtomographie	108
VI.2.2	Comparaison entre splats observés et simulés	111

VI.3	Splats de Ta sur Ta	120
VI.3.1	Revêtement du substrat	121
VI.3.2	Revêtement de la poudre	122
VI.4	Conclusions	125
VII	Conclusions et perspectives	127
VII.1	Conclusion générale	127
VII.2	Perspectives	129

Table des figures

I.1	Principe de la projection cold spray (d'après [5]).	6
I.2	Place du procédé cold spray dans la famille des procédés de projection thermique (d'après [6]).	6
I.3	Rendement de projection en fonction de la vitesse des particules.	7
I.4	Jet de matière à l'impact de cuivre sur acier (d'après [7]).	7
I.5	Principe de la microtomographie par rayons X (d'après [8]).	8
I.6	Principe de la tomographie de laboratoire avec émission conique des RX (d'après [9]).	8
I.7	Illustration de deux inclusions, ayant des formes très différentes (d'après [14]).	9
I.8	Ensemble des données dans l'espace des composantes principales (d'après [13]). Le flèches indiquent les tendances de variation de la forme des inclusions.	10
I.9	A gauche (A), une section de la région d'intérêt ($185,5 \times 168 \mu m^2$) avant segmentation. A droite (B), une section de la segmentation finale combinée (d'après [11]).	10
I.10	A gauche, particules déformées après impact à différents angles : (a) 0° , (b) 10° , (c) 20° , (d) 30° et (e) 40° (d'après [16]). A droite, évolution de la forme de la particule (de cuivre, ayant un diamètre de $20 \mu m$ et une vitesse de $650 ms^{-1}$) et du cratère aux instants : (a) 5 ns, (b) 20 ns, (c) 35 ns et (d) 50 ns (d'après [15]).	11
I.11	Représentation en fausses couleurs de la déformation plastique cumulée pour l'impact d'une particule de Ti sur substrat de SS avec une vitesse de $474 ms^{-1}$ et température de $252,4^\circ C$ (d'après [19]).	12
I.12	En haut, représentation en fausses couleurs de la déformation plastique effective pour une particule de cuivre incident à différents angles, simulées par la méthode SPH (d'après [21]). En bas, comparaison des simulations par (a) SPH et (b) CTH à des temps différents pour une particule de cuivre s'écrasant à $700 ms^{-1}$ sur un substrat d'acier (d'après [20]).	13
I.13	A gauche, approche eulérienne. Comparaison des simulations d'impact d'un particule de cuivre à $400 ms^{-1}$ sur substrat de cuivre pour le modèle (a) adiabatique et (b) non adiabatique. (d'après [22]). A droite, l'endommagement du matériau est inclus. (a) Déformation plastique effective et (b) température pour une particule de cuivre (diamètre de $20 \mu m$) s'écrasant à $500 ms^{-1}$ (d'après [23]).	13
I.14	Courbes déformation-contrainte pour le tantale. Le cercles montrent le modèle de Johnson-Cook ajusté aux données expérimentales (d'après [33]).	14

I.15	A gauche, déformation plastique effective (images en fausses couleurs) pour l'impact de cinq particules de cuivre sur substrat de cuivre, ayant une distance verticale initiale de : (a) $1\ \mu m$, (b) $10\ \mu m$ (d'après [36]). A droite, simulation d'impacts multiples pour une poudre composite, à différents moments. (a) état initial : en vert, particules de Zn et, en rose, particules de Al. (b-d) après 25, 51 et 85 ns, respectivement : déformation plastique effective (d'après [37]).	15
I.16	Résultats de la simulation d'empilement à différents moments. Chaque image représente une zone de taille $450 \times 150\ \mu m$. En noir, le vide et, en blanc, le cuivre (d'après [38]).	16
I.17	A gauche, a) et b), décomposition géométrique d'un splat réel, c) et d), répartition du volume d'intersection à l'impact. A droite, section d'un dépôt obtenu par le modèle d'empilement. (tirées de [41]).	17
I.18	A gauche, modélisation des particules par individuation des sommets et triangulation. A droite, exemple d'un dépôt obtenu par simulation numérique (24 couches, taux de rebonds de 33 %) (tirées de [45]).	17
II.1	Granulomètre laser Mastersizer 3000	19
II.2	A gauche, variation de l'atténuation massique en fonction de l'énergie des photons incidents pour le tantale et le cuivre (d'après la base de données du NIST, National Institute of Standards and Technology [47]). A droite, montage expérimentale à l'ESRF.	21
II.3	Système de projection cold spray « Impact Spray System 5/11 », fabriqué par « Impact Innovations GmbH » (Haun, Allemagne).	23
II.4	Pistolet du système « Impact Spray System 5/11 ».	23
II.5	Schéma du dispositif expérimental de mesure de vitesse des particules en vol.	24
II.6	Exemple de mesure de vitesse. Un intervalle temporel δt de 100 ns sépare les deux images. La mesure des distances parcourues dans ce laps de temps ($\delta x_1 = 65\ \mu m$ et $\delta x_2 = 102\ \mu m$) permet l'estimation des vitesses.	24
II.7	Technique de coulage en bande	25
II.8	Schéma illustrant la technique du dépôt chimique en phase vapeur sur lit fluidisé.	26
III.1	Résultats de la GL, par voie sèche (air) et par voie humide (eau).	28
III.2	Vue au MEB à deux différents agrandissements de la poudre de tantale utilisée pour les projections.	29
III.3	Trois sections des images 3D des échantillons de poudre. (a) : Poudre dispersée et enrobée dans une résine à froid. (b) : Détail de (a), à contraste et luminosité augmentés. Des halos gris (les artefacts) sont visibles autour des particules. (c) : Poudre dans un capillaire sans utilisation de résine.	29
III.4	Exemples de particules de la bibliothèque 3D. La librairie VTK a été utilisée pour la visualisation en 3D. La surface a été lissée, pour éliminer l'effet à « escalier » des images voxelisées. L'échelle est donnée par les axes, dont les flèches ont une norme de $15\ \mu m$	32
III.5	Exemples d'agrégats avant séparation. La méthode de visualisation 3D et l'échelle sont identiques à celles de Fig. III.4.	32
III.6	Moments d'inertie principaux adimensionnels. Le triangle en gris dans le plan (λ_1 , λ_2) indique l'aire admissible par les inéquations (III.2), d'après [13].	34

III.7	Calcul de l'imbrication, ici selon la direction horizontale. A gauche, imbrication nulle : l'objet mesuré est convexe et tous les point d'entrée sont des points de première entrée. A droite, imbrication positive : l'objet est non-convexe et certains points d'entrée ne sont pas des points de première entrée.	36
III.8	Comparaison des mesure morphologiques de taille avec le résultat de la granulométrie laser (GL) par voie sèche. (a) : GL et distribution du rayon de la sphère équivalente (Req) ; (b) : GL et distribution des trois côtés des boîtes englobantes le long des axes principaux d'inertie (B_1 , B_2 , B_3). . . .	36
III.9	Histogrammes et diagrammes de corrélation, à gauche pour les paramètres de taille, à droite pour ceux de forme.	38
III.10	Résultats de l'ACP pour le paramètres de taille. A gauche, projection des mesures sur le plan des deux premières composantes principales (P_1 , P_2). A droite, dispersion des objets mesurés sur le même plan (P_1 , P_2). . . .	39
III.11	Résultats de l'ACP pour le paramètres de forme. En haut à gauche, projection des mesures sur le plan des deux premières composantes principales (P_1 , P_2), en haut à droite sur le plan (P_3 , P_4). En bas à gauche, dispersion des objets mesurés sur le plan (P_1 , P_2), à droite sur le plan (P_3 , P_4). . . .	39
III.12	Variation de l'inertie moyenne d'un groupe pour différentes classifications, avec K (nombre de groupes) croissant.	41
III.13	Répartition des particules de la bibliothèque en 7 classes de forme (à gauche, en nombre, à droite en volume). La classe 1 contient les particules minuscules et les sphériques.	42
IV.1	Evolution des différentes énergies au cours de l'impact à 500 ms^{-1} d'une sphère de tantale de $20\text{ }\mu\text{m}$ de rayon sur un substrat du même matériau. (a) : énergies cinétique et interne et dissipation plastique. (b) : détail de la région du minimum d'énergie cinétique. (c) : énergie élastique, dissipations visqueuse et par frottement.	52
IV.2	Temps caractéristique de la diffusion de la chaleur pour une sphère chaude dans un milieu homogène. A gauche, temps nécessaire pour une diminution du 10 % de la température au centre de la sphère chaude. A droite, même représentation pour une diminution du 50 %.	54
IV.3	Modèle de Coulomb modifié : contrainte de cisaillement maximale τ_{\max} en fonction de la pression de contact, d'après [56].	56
IV.4	A gauche, état initial de la simulation d'impact d'un disque de tantale sur un substrat en cuivre. Le diamètre est de $20\text{ }\mu\text{m}$ et la vitesse 500 ms^{-1} . Les points en noir représentent les points de matière suivis. Ils coïncident avec un ensemble de nœuds à l'instant initial. A droite l'état final de la simulation. Les points de matière suivis ne coïncident plus avec des nœuds. . . .	60
IV.5	Bilan énergétique des simulations en 2D : courbes des énergies interne, cinétique, totale et de la dissipation plastique, en fonction du temps. . . .	61
IV.6	Bilan énergétique des simulations à vitesse réduite.	62
IV.7	Bilan énergétique des simulations d'impact des particules réelles.	63
IV.8	Représentations 2D d'un cylindre infini (modèle plan, à gauche) et d'une sphère (modèle axisymétrique, à droite).	64
IV.9	Comparaison entre différentes densités de maillage avant déformation. (a) : domaine de simulation entier. (b) : détail de la zone finement maillée. (c), (d) : détail de la particule.	64

IV.10	Effet de la densité de maillage sur la forme du splat (Ta sur Cu, diamètre de 20 μm , vitesse de 500 ms^{-1}) après déformation (150ns). De gauche à droite, les maillages FA25, FA50 et FA100.	65
IV.11	Etat intermédiaire (20ns depuis le premier contact) de la simulation d'un splat de Ta sur Cu (diamètre de 20 μm , vitesse de 500 ms^{-1}). Effet de la densité de maillage : en haut, température (en Kelvin), en bas, déformation plastique cumulée.	66
IV.12	Effet de $\bar{\tau}_{max}$ sur la forme, sur la température et sur la déformation plastique cumulée pour un splat de Ta sur Cu.	67
IV.13	Définition du taux d'écrasement.	67
IV.14	Effet de $\bar{\tau}_{max}$ sur l'écrasement de la particule et la profondeur maximale atteinte.	68
IV.15	Effet de l'orientation pour des impacts d'une particule elliptique ($r1 = 10 \mu m$, $r2 = 2 \mu m$) de tantale sur substrat en cuivre, à 600 ms^{-1} . Les figures montrent la température (en Kelvin) en haut et la déformation plastique cumulée en bas.	69
IV.16	Effet de l'orientation pour des impacts d'une particule elliptique ($r1 = 10 \mu m$, $r2 = 2 \mu m$) de tantale sur substrat en tantale, à 600 ms^{-1} . Les figures montrent la température (en Kelvin) en haut et la déformation plastique cumulée en bas.	69
IV.17	Effet de l'orientation pour des impacts d'une particule elliptique ($r1 = 10 \mu m$, $r2 = 2 \mu m$) à 600 ms^{-1} . Les figures montrent (a) l'écrasement et (b) la profondeur maximale atteinte.	69
IV.18	Rugosités de substrat essayées par simulation (état initiale). Les paramètres a et λ sont en unités de d_p . La particule est sphérique (diamètre $d_p = 20 \mu m$), à une vitesse de 500 ms^{-1}	70
IV.19	Résultats des simulations (température, en haut, et déformation plastique cumulée, en bas) pour l'impact de tantale sur cuivre.	71
IV.20	Résultats des simulations (température, en haut, et déformation plastique cumulée, en bas) pour l'impact de tantale sur tantale.	71
IV.21	(a) : Illustration du chemin diamétral vertical de la particule, où la déformation plastique équivalente a été mesurée. (b) : Déformation plastique équivalente, le long du chemin diamétral vertical de la particule. L'axe des abscisses représente la distance normalisée sur le diamètre initial de la particule. Chaque courbe est issue d'une simulation différente, où la taille et la vitesse de la particule ont varié (diamètres de 2, 5, 7, 10, 15, 20, 30, 40, 50, 60 μm et trois vitesses).	73
IV.22	(a) : Etat final de la première particule, pour la simulation de deux impact successifs. La déformation plastique équivalente est représentée. (b) : Déformation plastique équivalente, le long du chemin diamétral vertical de la première particule. L'axe des abscisses représente la distance normalisée sur le diamètre initial de la particule.	73
IV.23	Courbe d'écrouissage ajustée aux données de la figure IV.21b, utilisée dans la simulation d'impact des particules réelles.	74
IV.24	Résultats des mesures de taille/vitesse des particules en vol. Les points sont les mesures expérimentales, les trois courbes sont issues de l'ajustement aux données expérimentales de la relation taille-vitesse de l'eq. IV.6 (optimum et intervalle de confiance à 95%).	75

IV.25	Etat initial pour les simulations d'impact de la poudre revêtue. Ici la configuration « Ta sur Ta » est montrée, mais les impacts « Ta sur Cu » ont été aussi simulés.	75
IV.26	Etats finaux des simulations d'impact de poudre revêtue sur cuivre pour différents valeurs du cisaillement critique $\bar{\tau}_{\max}$	77
IV.27	Epaisseurs de la couche de fer, mesurées dans les simulations EF le long du chemin illustré à gauche, pour différents valeurs du cisaillement critique $\bar{\tau}_{\max}$. Les valeurs du paramètre, en MPa, sont précédées par les lettres « SH ».	78
IV.28	Vues au MEB en section d'un splat de tantale revêtu en fer, après impact sur cuivre.	79
IV.29	Sphère en 3D : en rouge les nœuds qui ne peuvent pas être remaillés. (a) : vue de loin. (b) : détail.	80
IV.30	Simulations d'impact des particules réelles. En haut, état initial (avant impact). En bas, déformation plastique cumulée et température à différents temps du calcul. Caractéristiques de la particule : classe de forme 5, $\text{Req} = 4,3 \mu\text{m}$, vitesse 627 ms^{-1}	82
IV.31	Simulations d'impact des particules réelles. En haut, état initial (avant impact). En bas, déformation plastique cumulée et température à différents temps du calcul. Caractéristiques de la particule : classe de forme 6, $\text{Req} = 7,2 \mu\text{m}$, vitesse 548 ms^{-1}	83
IV.32	Simulations d'impact des particules réelles. En haut, état initial (avant impact). En bas, déformation plastique cumulée et température à différents temps du calcul. Caractéristiques de la particule : classe de forme 5, $\text{Req} = 4,8 \mu\text{m}$, vitesse 584 ms^{-1}	83
IV.33	Bilan des simulations réussies, classées par différentes variables.	86
V.1	Etat final des simulations d'impact sur cuivre recouvert d'une couche de tantale de deux épaisseurs différentes ((a) $5 \mu\text{m}$ et (b) $15 \mu\text{m}$).	88
V.2	Ecrasement (H/L) d'une particule sphérique (diamètre de $20 \mu\text{m}$ et vitesse de 500 ms^{-1}) s'écrasant sur un substrat revêtu. Les cas de référence, CU et TA, représentent un substrat respectivement en cuivre et en tantale.	88
V.3	Image au microscope optique en coupe d'un dépôt de tantale sur cuivre, après indentation. (a) : essai préliminaire, les deux lignes ne sont pas parallèles et les points d'indentation ne sont pas à la même distance de l'interface dépôt-substrat. (b) : ensemble des points d'indentation utilisés pour caractériser le profil de dureté du dépôt (cf. fig. V.4).	89
V.4	Profil de dureté d'un dépôt de tantale sur cuivre, en fonction de la distance à l'interface substrat-dépôt. La courbe en pointillé est la moyenne pondérée ($219 \pm 4.7 \text{ HV } 25\text{g}$) et la bande grise représente l'intervalle de confiance à 95% supposant une distribution gaussienne.	90
V.5	Traitement préliminaire des données EF : repli de matière (jet).	91
V.6	Résultat des simulations d'empilements à déplacements verticaux, pour différents nombres de particules déposées. Les images représentent des sections d'un dépôt en cours de formation. Une couleur différente a été assignée à chaque particule du dépôt. (Domaine de simulation : $500 \times 200 \mu\text{m}^2$. Résolution : $10 \text{ pixel}/\mu\text{m}$	93
V.7	Données en sortie des calculs par EF : points de matière suivis (pour le substrat seulement).	94

V.8	Evolution temporelle en cours d'impact des points de matière suivis dans le substrat (particule de Ta, diamètre de $10\ \mu m$, vitesse de $600\ ms^{-1}$). . .	95
V.9	Interpolation polynomiale des champs de déplacement pour la particule. . .	96
V.10	Interpolation polynomiale des champs de déplacement pour le substrat. . .	96
V.11	Triangulation de Delaunay sur les points de matière suivis (les mêmes qu'en fig. V.7).	97
V.12	Schéma illustrant les étapes de la simulation d'empilement, pour les deux premières particules du dépôt (modèle d'empilement II).	99
V.13	Simulation d'empilement : approche discrétisée.	100
V.14	Simulation d'empilement : collisions successives (approche discrétisée). . .	101
V.15	Empilements successifs des quatre premières particules (approche vectorielle). Les images résultantes du modèle 2D sont comparables à des sections d'un dépôt. Les lignes qui constituent les frontières des splats sont, dans l'approche vectorielle, des séries de points.	103
V.16	Comparaison entre l'observation expérimentale et la simulation d'empilement (approche vectorielle).	104
VI.1	Vue au MEB en perspective de splats de Ta sur Cu.	108
VI.2	(a) : illustration schématique d'un échantillon « single splat » préparé pour la MTX. (b) : Section d'une image microtomographique d'un échantillon « single splat ».	108
VI.3	Exemple des splats de la bibliothèque 3D.	109
VI.4	Comparaison des bibliothèques des particules de la poudre et des splats : histogrammes des longueurs des côtés des boîtes englobantes au long de X, Y et Z. X et Y définissent le plan de surface du substrat, Z la direction à lui perpendiculaire.	110
VI.5	Comparaison statistique des splats simulés (EF) et observés par MTX. . .	113
VI.6	Comparaison statistique à l'état initial (avant impact) des particules dont l'impact a été simulé et de leur population d'origine (bibliothèque 3D des particules, cf. [CHAP POUDRE]).	114
VI.7	Définition des trois pénétrations : minimale (H min), maximale (H max) et du barycentre (H bary). La ligne « $y = 0$ » représente la surface du substrat avant déformation.	115
VI.8	Comparaison des splats simulés (EF) et observés par MTX. A gauche, histogrammes des pénétrations. A droite, relation entre B_2 et pénétrations. . .	116
VI.9	Comparaison directe d'un splat simulé (classe de forme 2, $B_1, B_2, B_3 = 13,1, 10,8, 10,8\ \mu m$, vitesse $578\ ms^{-1}$) avec des splats observés au MEB et par microtomographie.	117
VI.10	Comparaison directe d'un splat simulé (classe de forme 4, $B_1, B_2, B_3 = 13, 7,7, 7,7\ \mu m$, vitesse $454\ ms^{-1}$) avec des splats observés au MEB et par MTX.	118
VI.11	Comparaison des trois pénétrations entre splats simulés (carrés rouges) et observés (points bleus) : (a) minimale, (c) maximale et (b) au barycentre. Les barres d'erreur correspondent à l'incertitude sur les mesures de distance, quantifiée à ± 1 pixel, soit à $\pm 0,77\ \mu m$	119
VI.12	Vue MEB en perspective de splats Ta sur Cu.	120
VI.13	Vues au MEB de la poudre revêtue, à différents agrandissements.	122
VI.14	Comparaison des granulométries laser de la poudre avant (provenant de deux lots différents) et après revêtement (« Lifco » en légende.	123
VI.15	Vues au MEB en coupe de la poudre revêtue.	123

VI.16	Vues de dessus au MEB, en électrons secondaires (a) et en électrons rétrodiffusés (b), d'un échantillon de type « single splat » avec la poudre revêtue.	124
VI.17	Vues au MEB en perspective, en électrons secondaires (a) et en électrons rétrodiffusés (b), d'un échantillon de type « single splat » avec la poudre revêtue.	125
VI.18	Section d'une image 3D issue de la MTX de l'échantillon de fig. VI.17. . .	125

Acronymes

MEB	Microscope Electronique à Balayage
GL	Granulométrie Laser
MTX	MicroTomographie par rayons X
ESRF	(ang.) European S
ACP	Analyse en Composantes Principales
EF	Eléments Finis
ALE	(ang.) Arbitrary Lagrangian-Eulerian
JC	Johnson-Cook
EOS	(ang.) Equation Of State

Introduction générale

La projection dynamique par gaz froid, couramment appelée « cold spray », est une technique dont le principe, établi dans les années 1980, consiste à projeter des particules de poudres à haute vitesse sur un substrat et ainsi réaliser un dépôt par déformation et empilement de ces particules. Le cold spray entre, actuellement, dans sa phase de maturité. De ce fait, il commence à rencontrer l'intérêt des industriels, principalement pour l'élaboration de dépôts fonctionnels pour la conduction électrique et thermique, la protection contre la corrosion ou encore la tenue à l'usure. Parallèlement, un nouveau champ d'application en plein essor concerne la réparation de pièces mécaniques dans des domaines aussi variés que l'industrie automobile, la pétrochimie ou l'aéronautique, avec la possibilité de réparer les pièces *in situ*.

Parallèlement, le procédé intéresse le domaine aéronautique pour la possibilité de réparer les pièces *in situ*. Au moment où cette thèse est en rédaction, les premiers essais vers l'utilisation du cold spray pour la fabrication additive sont en cours.

Le cold spray est complémentaire des autres techniques de projection thermique, puisque les particules, accélérées aérodynamiquement à des hautes vitesses, sont maintenues à l'état solide jusqu'au moment de l'impact, leur température restant modérée. Cela permet d'obtenir des dépôts à haute densité, tout en protégeant les matériaux de l'oxydation durant la projection. Les dépôts obtenus par cold spray présentent une microstructure particulière, constituée par les particules de la poudre déformées à l'impact. La microstructure influence directement certaines propriétés physiques du dépôt comme, par exemple, la conductibilité électrique et thermique. En vue de l'optimisation du procédé, il est très utile d'avoir un outil prédictif de la microstructure du dépôt, pour différents matériaux et différents paramètres du procédé. Par exemple, cela permettrait d'estimer l'effet de la vitesse ou de la forme des particules de la poudre sur la microstructure du dépôt et les propriétés résultantes.

De nombreuses études existent en bibliographie sur la simulation d'impacts par éléments finis. La totalité des articles porte sur l'impact de particules sphériques. De plus, pour leur nature, ces simulations se limitent à l'impact d'un petit nombre de particules (quelques dizaines en 2D et quelques unités en 3D). On peut trouver aussi quelques études sur la simulation d'empilements. Les modèles utilisés alors sont totalement empiriques et n'ont aucune base physique.

Ce travail a pour objectif de développer une modélisation du procédé à la fois fondée sur l'observation expérimentale et sur des modèles physiques. Son application à des particules autres que sphériques est aussi envisagée. Cette approche trouve son originalité dans le couplage de simulations en éléments finis avec les observations microtomographiques et avec une modélisation simplifiée, dite morphologique, de l'empilement des particules. Les images microtomographiques de la poudre, convenablement traitées, devront fournir une bibliothèque, constituée par les particules de la poudre, en 3D. L'analyse en éléments finis permettra ensuite, avec l'apport des mesures expérimentales diamètre-vitesse des particules en vol, de simuler la déformation à l'impact, à la fois de la particule réelle et du substrat. Les champs de déformation ainsi calculés seront finalement employés dans le mo-

dèle morphologique, qui permettra la simulation de l'empilement de milliers de particules. Le résultat attendu est donc une reconstruction de la microstructure du dépôt, en fonction de la morphologie de la poudre et des paramètres de projection, qui entrent indirectement dans le modèle au travers de la vitesse des particules mesurée expérimentalement.

Cette étude est découpée en six chapitres :

Un premier chapitre, bibliographique, porte sur l'état de l'art des différentes techniques de caractérisation et de simulation employées. Les études les plus marquantes sur la simulation par éléments finis et la modélisation d'empilements y sont, en particulier, exposées.

Le deuxième chapitre présente les matériaux utilisés pour cette étude, c'est-à-dire, la poudre de tantale et le cuivre pour le substrat. La mise en place de techniques particulières, comme l'enrobage de la poudre avec une couche de contraste pour la microtomographie, est aussi traitée.

Le troisième chapitre présente la caractérisation morphologique en 3D de la poudre. Le traitement des images microtomographiques conduit à la construction d'une bibliothèque 3D des particules de la poudre, réparties en classes de forme.

Le quatrième chapitre est ciblé sur la simulation par éléments finis, à partir des particules idéalisées en 2D, jusqu'aux simulations d'impacts des particules réelles en 3D, en provenance de la bibliothèque du chapitre précédent. Les effets de la rugosité du substrat sont aussi considérés.

Le cinquième chapitre porte sur la modélisation d'empilements. Le traitement et l'utilisation des données des simulations par éléments finis, ainsi que la mise en place d'un algorithme itératif pour la simulation d'empilements y sont développées.

Enfin, le sixième chapitre présente une validation partielle des modèles employés. En particulier, la confrontation des simulations par éléments finis avec les observations expérimentales est exposée.

Ces travaux de recherche scientifique s'inscrivent dans le cadre d'une collaboration avec le laboratoire de projection thermique du CEA-DAM/Le Ripault.

Chapitre I

Eléments bibliographiques

Ce premier chapitre expose les références bibliographiques, réparties par aire thématique, sur lesquelles s'appuie la présente thèse.

I.1 Projection dynamique par gaz froid (« cold spray »)

La projection dynamique par gaz froid (« cold spray ») fait partie de la famille des projections thermiques. Depuis la publication des premiers articles lui étant consacrés, au début des années 2000, on a assisté au développement de la recherche scientifique autour du cold spray. Depuis quelques années, le nombre des publications sur ce sujet, sorties sur des journaux à comité de lecture, dépasse la centaine par an. Les revues qui hébergent la majorité des études sur le cold spray sont *Journal of Thermal Spray Technology*, *Surface and Coating Technology* and *Applied Surface Science*. Quelques ouvrages couvrent le sujet d'un point de vue général. Le dernier [1] date de 2015. La référence [2] parcourt en détail tous les procédés de projection thermique, permettant ainsi d'encadrer les particularités du cold spray par rapport aux autres techniques. La référence [3] offre une excellente introduction au cold spray, abordant les différents aspects du sujet dans leurs détails. Entre autres, l'histoire de la découverte du procédé est racontée directement par l'un de ses inventeurs, A. Papyrin. Le procédé de projection cold spray a été, en fait, découvert par des scientifiques du laboratoire de recherche « Institute of Theoretical and Applied Mechanics » de la « Siberian Branch of the Russian Academy of Sciences » à Novosibirsk en Russie. Au cours d'expériences relatives à l'étude des écoulements supersoniques diphasiques (gaz et particules solides) autour de maquettes, il a été montré que des particules, utilisées comme traceurs dans les expériences en soufflerie, pouvaient adhérer sur les maquettes au delà d'une certaine vitesse.

Une définition du cold spray, donnée par A. Papyrin, est la suivante [4] : « La projection dynamique par gaz froids plus communément appelée cold spray est un procédé permettant de réaliser des dépôts en exposant un substrat métallique ou diélectrique à un jet à haute vitesse ($300-1200\text{ ms}^{-1}$) de petites particules ($1-50\text{ }\mu\text{m}$) accélérées au moyen d'un écoulement supersonique d'un gaz comprimé ».

Le procédé cold spray est fondé sur l'injection d'un gaz, comprimé et préchauffé, dans une tuyère de Laval (convergente-divergente), comme montré en Fig. I.1. Les gaz généralement utilisés sont l'hélium, l'azote ou un mélange hélium azote. Les pressions et les températures peuvent atteindre 5 MPa et plus de 1000 °C avec les équipements actuels de projection. Le gaz injecté est accéléré dans la partie convergente de la buse jusqu'à atteindre une vitesse de Mach 1 au col. Dans la partie divergente pression et température diminuent et la vitesse, devenue supersonique, augmente. La pression et la température initiales (avant l'écoulement dans la buse) sont dites de stagnation et constituent une

partie des paramètres de projection.

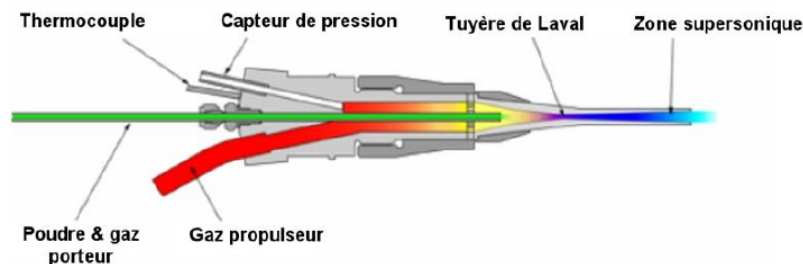


FIGURE I.1 – Principe de la projection cold spray (d'après [5]).

Les particules sont généralement injectées dans la partie convergente de la buse. Il existe néanmoins des systèmes permettant l'injection dans la partie divergente, où la pression est moindre. Les particules subissent un échauffement par le gaz porteur environnant. L'élévation de température est mitigée par le fait que les particules sont rapidement accélérées et ne restent donc pas suffisamment longtemps en contact avec le gaz chaud pour fondre. De plus, la détente du gaz dans la partie divergente de la buse conduit à une chute notable de la température. Les particules maintiennent, par conséquent, leur état solide tout au long de leur voyage vers le substrat où leur écrasement a lieu. La formation du dépôt est réalisée par empilement de particules qui subissent une forte déformation plastique à l'impact. Ce processus implique un comportement relativement ductile du matériau à projeter ou d'au moins l'un des matériaux dans le cas de composites. Les caractéristiques notables des dépôts obtenus sont une faible porosité (généralement inférieure à 5 %) et un faible niveau d'oxydation. Une particule écrasée prend le nom de « splat ». Le procédé cold spray se distingue de la plupart des procédés de projection thermique par sa faible température de projection combinée aux hautes vitesses des particules (cf. fig. I.2, à droite). De plus, un rendement de projection souvent au delà de 80 % (cf. fig. I.2, à gauche) combiné à des débits de poudres conséquents en font un procédé pouvant être économique d'un point de vue industriel, du moins quand le gaz principal est l'air ou l'azote.

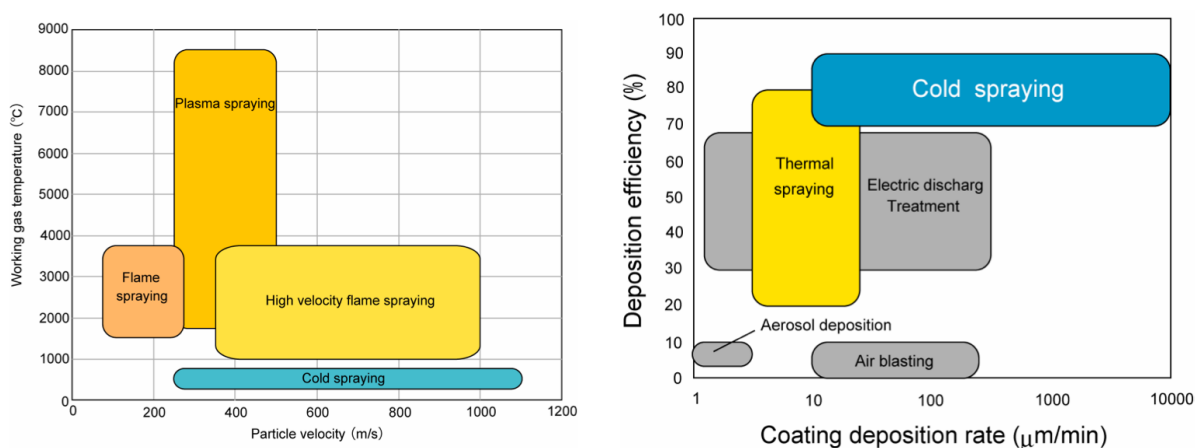


FIGURE I.2 – Place du procédé cold spray dans la famille des procédés de projection thermique (d'après [6]).

L'effet de l'impact de particules sur une surface est différent selon leur vitesse et leur diamètre. Cela est illustré sur la figure I.3. A des faibles vitesses, les particules de plus gros diamètres vont rebondir sur la surface, avec comme conséquence une érosion du matériau. A ces mêmes vitesses, certaines particules de diamètre inférieur peuvent

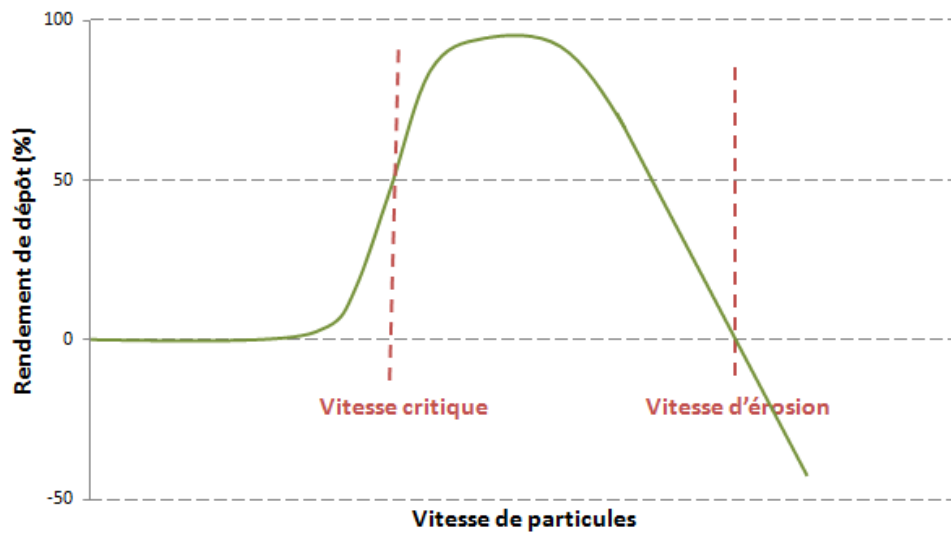


FIGURE I.3 – Rendement de projection en fonction de la vitesse des particules.

adhérer à la surface grâce aux effets des forces microscopiques (électrostatiques et de Van der Waals). A des vitesses très élevées (supérieures à la vitesse d'érosion), les particules n'adhèrent plus et leurs impacts ont pour effet la dégradation de la surface du dépôt. A des vitesses intermédiaires, un dépôt peut se former. Il existe une vitesse critique des particules projetées, propre à chaque couple de matériaux (poudre et substrat) et dépendant de la température, à partir de laquelle un dépôt se forme sur le substrat. La vitesse critique est définie comme la vitesse pour laquelle le rendement de dépôt est de 50 % et est environ égale à la moitié de la vitesse nécessaire pour provoquer la fusion totale de la particule [7]. Elle dépend de la résistivité thermique du matériau et de la génération de chaleur engendrée par la déformation plastique lors de l'impact et peu de la température de fusion [7].

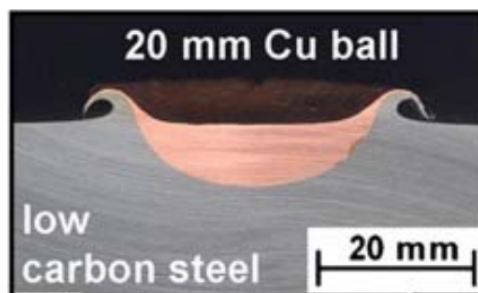


FIGURE I.4 – Jet de matière à l'impact de cuivre sur acier (d'après [7]).

A l'impact, la déformation et le chauffage sont localisés à l'interface particule-substrat. Le métal proche de l'interface est soumis à une brusque élévation de température et de pression, ce qui conduit à la formation d'un jet de matière, comme illustré sur la fig. I.4. La liaison entre la particule et le substrat se produit localement au bord des surfaces en contact et nécessite une température de 60 % de la température de fusion.

I.2 Microtomographie par rayons X

La microtomographie par rayons X (MTX dans la suite) est une technique de caractérisation non destructive qui permet une analyse tridimensionnelle de la matière [9]. Le principe de fonctionnement est le suivant : un faisceau provenant d'une source de rayons

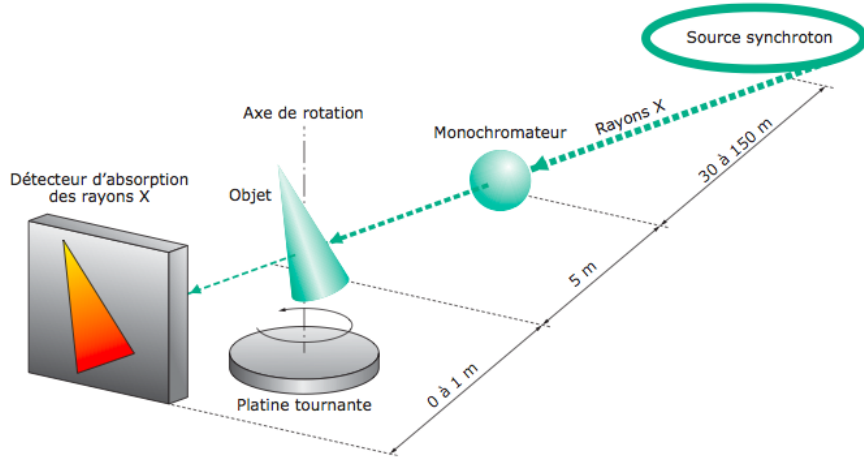


FIGURE I.5 – Principe de la microtomographie par rayons X (d'après [8]).

X traverse un échantillon fixé sur une platine tournante (Fig. I.5). A chaque pas de rotation de la platine, une radiographie de l'échantillon est enregistrée à l'aide d'un système d'acquisition constitué d'un scintillateur, qui transforme les rayons X en lumière visible, et d'un système optique pour enregistrer l'image. Le principe physique de la microtomographie s'explique par la loi de Beer-Lambert qui donne l'intensité transmise (I_x) à travers une épaisseur de matière (x) en fonction de l'intensité incidente du faisceau (I_0) et du coefficient d'absorption (μ) par la relation suivante :

$$I_x = I_0 \exp(-\mu x) \quad (\text{I.1})$$

Selon le trajet du faisceau, le coefficient d'absorption varie en fonction des propriétés de la matière traversée, expliquant la variation de contraste observée sur les radiographies enregistrées (projections en transmission). Ces radiographies constituent la base de données expérimentales nécessaire à la reconstruction tridimensionnelle du volume de matière balayé.

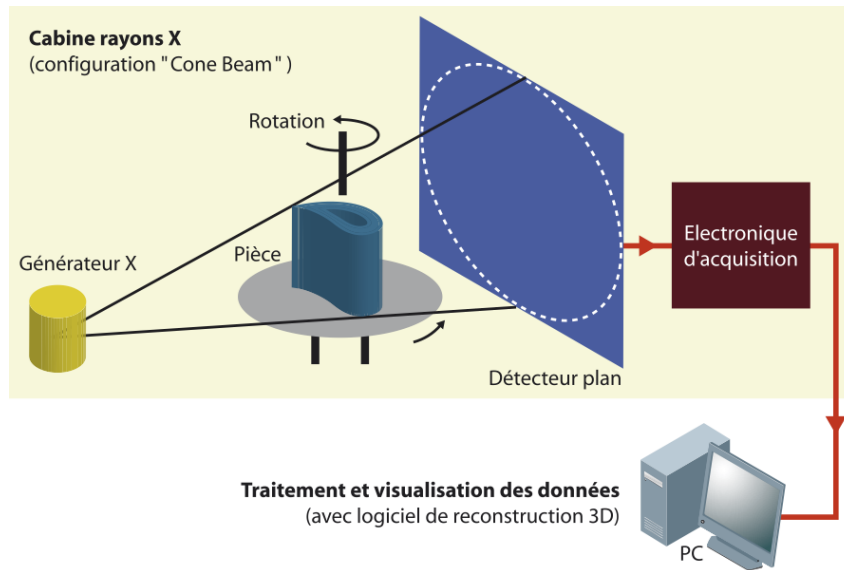


FIGURE I.6 – Principe de la tomographie de laboratoire avec émission conique des RX (d'après [9]).

La tomographie vise à traiter l'ensemble des données issues des radiographies représentant l'atténuation du faisceau incident pour une position angulaire donnée. Si le pas

de rotation de l'échantillon est suffisamment faible, il est possible de calculer par un algorithme adapté la valeur du coefficient d'absorption en tout point du volume observé. Cette valeur locale permet d'affecter un niveau de gris représentatif de la nature du matériau à un cube appelé voxel (équivalent de pixel en 3D). La taille du voxel dépend de la résolution du système d'acquisition.

La technique de la MTX a été déjà utilisée dans l'étude des dépôts obtenus par cold spray ou par projection plasma, comme plusieurs études le montrent [10] [11] [12]. Cependant, elle n'a pas été appliquée aux poudres avant projection.

I.3 Caractérisation morphologique

Parmi les travaux sur la caractérisation de la forme des objets, deux publications [13] [14] ont fourni une base à l'analyse du chapitre IV. Les deux études portent sur la caractérisation de forme de certaines inclusions intermétalliques dans un alliage de la série 5000 à base d'Al. Trois types d'inclusions sont ici observées : des particules contenant du fer (Al_xFe), d'autre contenant du Si (Mg_2Si) et des vides (porosité). Les trois phases se forment pendant la solidification de l'alliage et peuvent montrer des formes assez complexes en 3D comme montré en fig. I.7. L'utilisation de différents descripteurs morphologiques en 3D permet d'étudier les formes des inclusions (cf. fig. I.8), ainsi que leur évolution pendant la mise en forme du matériau. L'ensemble des mesures morphologiques introduites dans ces deux articles sera partiellement repris et utilisé dans la thèse pour la caractérisation 3D des particules en cold spray (avant et après l'impact), développée aux chapitres III et VI.

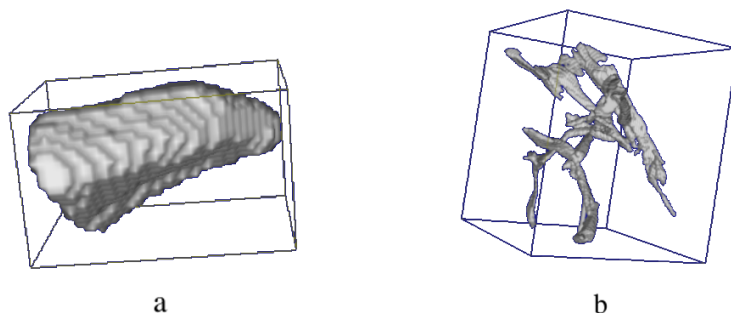


FIGURE I.7 – Illustration de deux inclusions, ayant des formes très différentes (d'après [14]).

Une étude particulièrement intéressante porte sur la segmentation et l'analyse morphologique des particules d'un dépôt cold spray d'aluminium [11]. Normalement, l'homogénéité du matériau au sein d'un dépôt empêche l'utilisation de la MTX pour y observer la disposition des splats. Dans le cas spécial de l'aluminium, cela est possible grâce à la propriété particulière du gallium de pouvoir se diffuser dans les frontières des splats constituant le dépôt. Le gallium agit comme un marqueur et permet la prise d'images microtomographiques qui révèlent les frontières entre splats. Des méthodes de segmentation avancées, notamment le « partage des eaux stochastique », permettent de séparer les splats et, donc, de les étudier individuellement. La figure I.9 montre, à gauche, une section d'une image MTX du dépôt (les frontières entre les splats sont en clair) et, à droite, la reconstruction des splats obtenue par segmentation. La définition d'imbrication (cf. chapitre III) est introduite ici pour quantifier la convexité des splats.

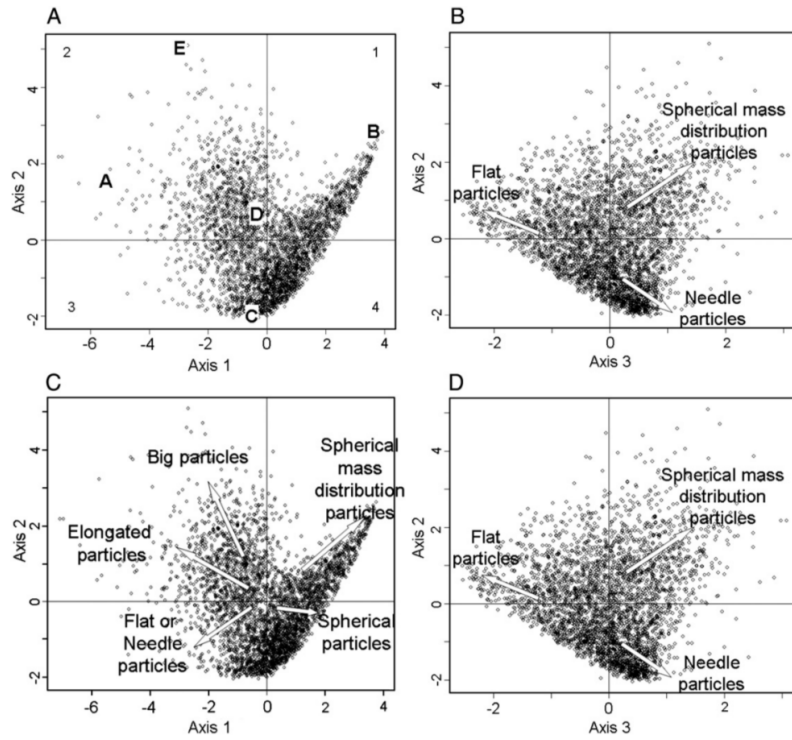


FIGURE I.8 – Ensemble des données dans l'espace des composantes principales (d'après [13]). Les flèches indiquent les tendances de variation de la forme des inclusions.

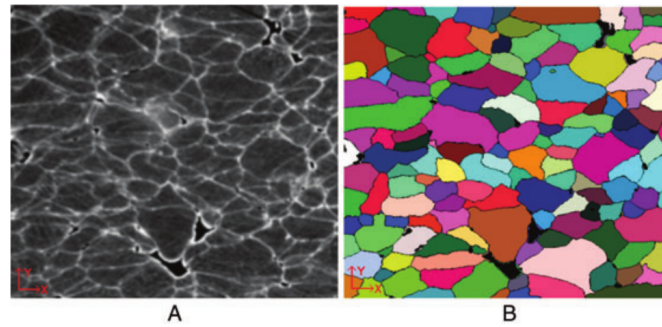


FIGURE I.9 – A gauche (A), une section de la région d'intérêt ($185,5 \times 168 \mu m^2$) avant segmentation. A droite (B), une section de la segmentation finale combinée (d'après [11]).

I.4 Simulations d'impacts

L'une des études la plus souvent citée est celle de Grujicic *et al.* [15], dans laquelle des simulations d'impacts sont réalisées grâce au logiciel CTH utilisant la méthode des différences finies et le remaillage itératif. Deux modèles de déformation y sont étudiés : celui de Steinberg-Guinan-Lund et celui de Zerilli-Armstrong. La formation des jets de matériau issus d'une très haute déformation plastique est observée et son rôle dans l'élimination des couches superficielles (les oxydes par exemple) établi (cf. fig. I.10). L'instabilité à l'interface est supposée être le principal mécanisme à l'origine de l'adhérence des splats.

L'effet de l'angle d'impact est examiné [16] par une série de simulations par éléments finis (EF dans la suite), avec le logiciel LS-DYNA, de l'impact des particules de cuivre, projetées sur un substrat du même matériau. L'angle d'impact a été varié (0° , 10° , 20° , 30° et 40°) et la profondeur du cratère généré est mesurée (cf. fig. I.10). Pour un angle fixé, cette dernière augmente de façon linéaire avec la vitesse d'impact. En comparant les résultats pour différents angles, il est montré que la profondeur du cratère dépendait de

la composante de la vitesse normale au plan du substrat.

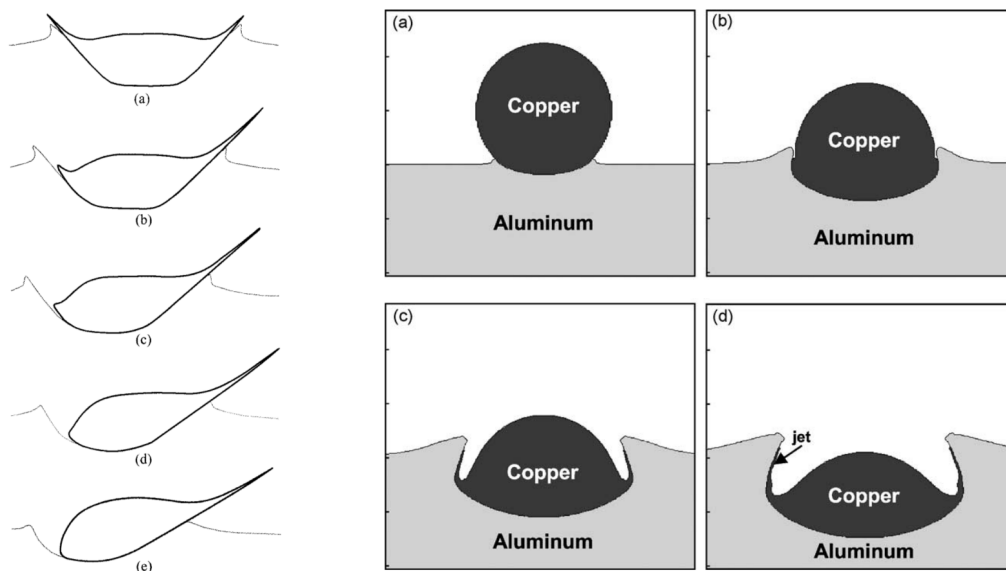


FIGURE I.10 – A gauche, particules déformées après impact à différents angles : (a) 0° , (b) 10° , (c) 20° , (d) 30° et (e) 40° (d'après [16]). A droite, évolution de la forme de la particule (de cuivre, ayant un diamètre de $20\ \mu\text{m}$ et une vitesse de $650\ \text{m.s}^{-1}$) et du cratère aux instants : (a) 5 ns, (b) 20 ns, (c) 35 ns et (d) 50 ns (d'après [15]).

Dans [17], la relation entre la taille et la déformation est étudiée, pour des particules sphériques d'aluminium et de cuivre. Deux modèles de formes de splat y sont présentés (le paraboloïde et l'ellipsoïde) puis comparés avec les observations expérimentales des splats coupés à l'aide du FIB. Les méthodes présentées donnent une erreur du 15 % sur le diamètre et l'écart le plus grand porte sur les particules les plus grossières.

Une autre étude porte sur la simulation d'impact EF en 3D [18] avec ABAQUS/Explicit en formulation lagrangienne. Le maillage est divisé en sections pour optimiser le réseau de mailles, afin de réduire le nombre d'éléments en dehors de la zone d'impact. L'un des aspects abordés ici est la réflexion des ondes de contrainte sur les bords externes du modèle qui empêche d'aboutir à une solution stable. Pour prévenir cet artefact, les auteurs ont utilisé des éléments infinis sur les frontières. Ensuite, l'étude se concentre sur la détermination de la vitesse critique. Elle suppose que cette dernière correspond au commencement du cisaillement adiabatique, phénomène marqué par l'apparition d'une instabilité dans les paramètres physiques comme, par exemple, dans la température. L'analyse de ces instabilités par des techniques mathématiques permet donc d'estimer la vitesse critique.

La grande majorité des études sur la simulation d'impact utilise des particules sphériques. En revanche, dans la pratique, l'utilisation des poudres irrégulières est assez courante. Une seule étude [19], à notre connaissance, aborde le sujet des effets de la forme de la particule sur les impacts et ne met en évidence que les aspects négatifs liés à l'utilisation des poudres irrégulières. Dans cet étude, un modèle adiabatique 2D, utilisant la loi de Johnson-Cook et l'équation d'état de Mie-Gruneisen, a été mis en place. La particule était une ellipse d'axes mesurant respectivement 56.29 et $20\ \mu\text{m}$. Le rôle de l'orientation à l'impact a été mis en évidence (cf. fig. I.11). La position à l'horizontal produit des faibles déformations. Pour l'orientation verticale, en revanche, la déformation se concentre dans la partie inférieure de la particule. La partie supérieure, peu déformée et assez surélevée, pourrait contribuer à la formation de la porosité du dépôt. Les deux orientations sont considérées comme défavorables à l'adhérence entre particule et substrat. Pour les impacts obliques, la symétrie est perdue et la particule est mise en rotation pendant son

écrasement, ce qui peut contribuer au décollement, partiel ou complet, de la particule du substrat.

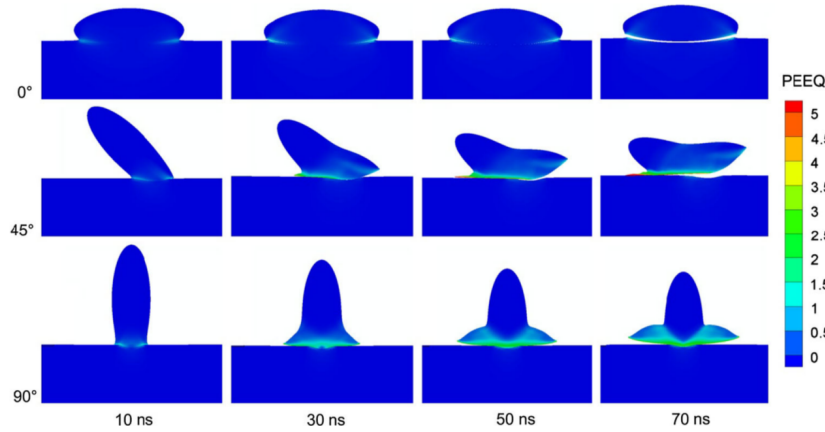


FIGURE I.11 – Représentation en fausses couleurs de la déformation plastique cumulée pour l'impact d'une particule de Ti sur substrat de SS avec une vitesse de 474 m s^{-1} et température de $252,4 \text{ }^{\circ}\text{C}$ (d'après [19]).

L'approche lagrangienne aux éléments finis (le maillage est lié à la matière et se déplace avec elle) semble être la plus utilisée parmi les études sur la simulation d'impact en cold spray. Dans les dernières années, des méthodes nouvelles ont été essayées, comme la SPH (en anglais « Smoothed Particle Hydrodynamics »). La technique présente différentes caractéristiques [20] : en lieu et place du maillage, la méthode utilise un noyau d'interpolation lissé (la *smoothed particle*) pour évaluer les variables dans le domaine de simulation. Les équations de conservation de la masse, de la quantité du mouvement et de l'énergie sont écrites dans cette formulation. De plus, un modèle d'adhésion est mis en place. La même technique a été appliquée à des simulations d'impact avec un angle (cf. [21]). La composante tangentielle de la vitesse introduit une force de tension et diminue l'aire de contact. Au même moment, la déformation asymétrique entraîne la concentration du frottement sur une zone plus petite. Ce phénomène peut faciliter l'augmentation de la température et l'adhésion entre particule et substrat. Les simulations SPH sont comparables aux simulations EF et conformes aux résultats expérimentaux, confirmant ainsi la validité de la méthode (cf. fig. I.12).

D'autres essais dignes d'être mentionnés, relativement à la méthode des éléments finis, utilisent l'approche eulérienne (le maillage est fixe et la matière se déplace) et l'introduction de l'endommagement dans les lois de comportement des matériaux. Dans [22], des simulations EF d'impact avec l'approche eulérienne ont été réalisées. Le modèle adiabatique est comparé au modèle complet thermomécanique (cf. fig. I.13 et des différences remarquables de température sont constatées dans les deux cas. Les résultats indiquent que l'approche eulérienne est préférable à celle lagrangienne dans le cas du cold spray, caractérisé par des grandes déformations.

Dans [23] et [24], un modèle 3D avec approche lagrangienne est mis en place avec le logiciel Abaqus/Explicit. Différentes simulations ont permis d'étudier plusieurs techniques. En particulier, l'endommagement du matériau a été introduit, selon la formulation dynamique de Johnson-Cook. Cela consiste à éliminer les éléments pour lesquels la déformation plastique équivalente dépasse une certaine valeur. Cette approche provoque une perte de matière (visible en fig. I.13) mais, en revanche, simplifie et rend plus robustes les simulations.

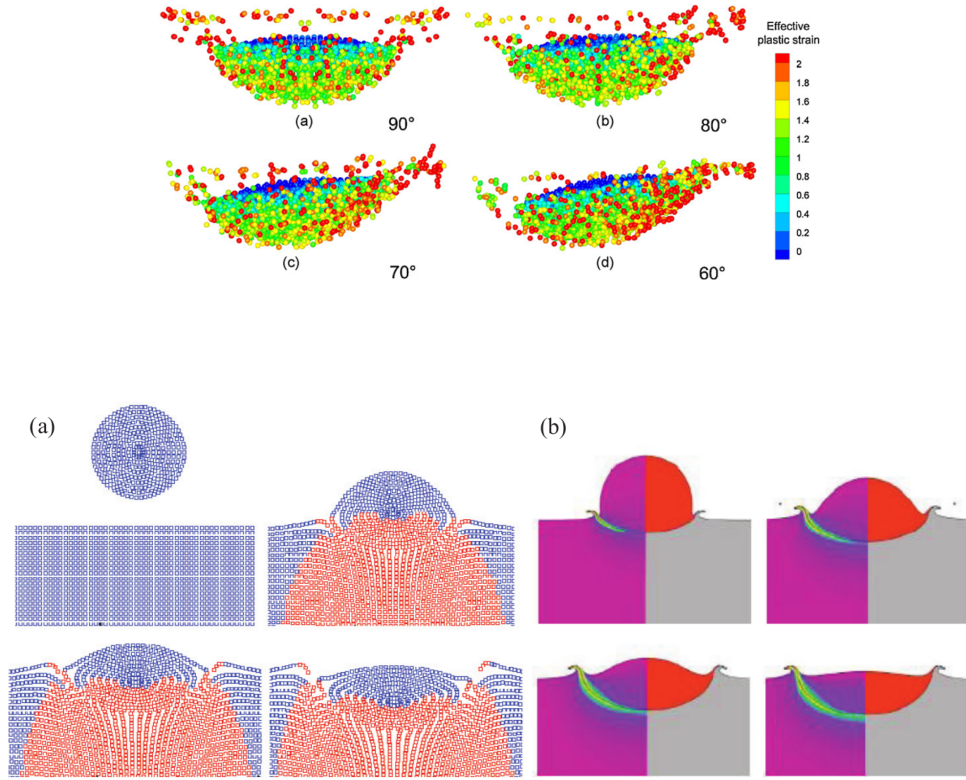


FIGURE I.12 – En haut, représentation en fausses couleurs de la déformation plastique effective pour une particule de cuivre incidente à différents angles, simulées par la méthode SPH (d'après [21]). En bas, comparaison des simulations par (a) SPH et (b) CTH à des temps différents pour une particule de cuivre s'écrasant à 700 m s^{-1} sur un substrat d'acier (d'après [20]).

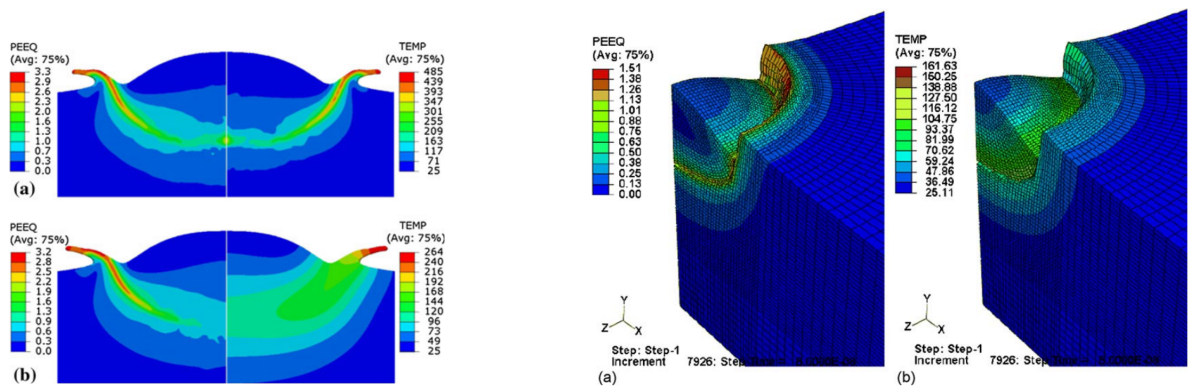


FIGURE I.13 – A gauche, approche eulérienne. Comparaison des simulations d'impact d'un particule de cuivre à 400 m s^{-1} sur substrat de cuivre pour le modèle (a) adiabatique et (b) non adiabatique. (d'après [22]). A droite, l'endommagement du matériau est inclus. (a) Déformation plastique effective et (b) température pour une particule de cuivre (diamètre de $20 \text{ }\mu\text{m}$) s'écrasant à 500 m s^{-1} (d'après [23]).

I.5 Propriétés des matériaux

Des informations sur le tantale et ses oxydes peuvent être trouvées dans l'ouvrage classique de Kofstad [25]. Le tantale présente un seul oxyde stable (Ta_2O_5) et plusieurs métastables qui ne peuvent être isolés. Les principaux sont TaO , Ta_2O et Ta_4O et interviennent dans l'oxydation à faible et moyenne température. Les mécanismes et les cinétiques d'oxydation constituent le sujet de plusieurs publications, dont certaines relativement datées ([26], [27], [28], [29], [30] et [31]).

Les simulations EF (cf. chapitre IV) utilisent des lois de comportement des matériaux qui requièrent un certain nombre de paramètres. Dans cette thèse, en particulier, le modèle de Johnson-Cook a été utilisé. Ses paramètres doivent donc être estimés par l'ajustement aux données expérimentales, issus des mesures dans l'expérience connue sur le nom anglais de « Split Hopkinson Pressure Bar » (cf. [32]), qui permet d'atteindre des vitesses de déformation dépassant les 1000 s^{-1} . Cela a été fait pour plusieurs matériaux, dont le tantale [33] (cf. fig. I.14) et le cuivre [34].

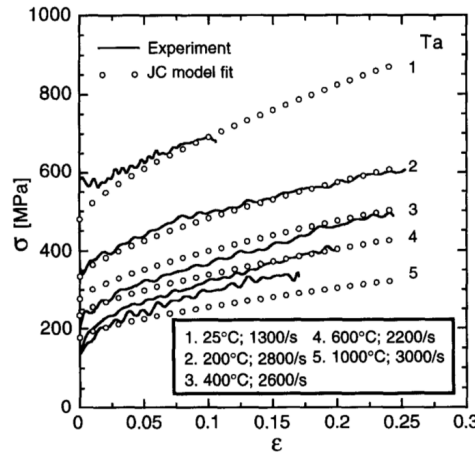


FIGURE I.14 – Courbes déformation-contrainte pour le tantale. Le cercles montrent le modèle de Johnson-Cook ajusté aux données expérimentales (d'après [33]).

Une publication récente [35] compare le modèle de Johnson-Cook (qui est, largement, le plus utilisé dans la simulation du cold spray) à six autres lois de comportement plastique, adaptées aux hautes vitesses de déformation, et à une observation expérimentale d'un splat. La conclusion est que le modèle de Johnson-Cook surestime la déformation et que d'autres modèles sont plus adaptés au cas du cold spray, comme illustré en fig. I.14. Il faut néanmoins ajouter que les simulations sont sensibles aux techniques adoptées dans les calculs, comme par exemple le remaillage. Les résultats pourraient donc être différents pour d'autres réglages du logiciel de simulation. De plus, les paramètres matériaux pour les six modèles proviennent de différentes publications et nul n'assure leur compatibilité. Enfin, la comparaison avec l'observation est faite avec un seul splat, dont la vitesse était déclarée être de 500 m s^{-1} . Cette valeur doit être estimée sur la base d'une vitesse moyenne, car il est impossible de mesurer la vitesse d'une particule en vol et identifier la même particule, après impact, parmi les splats déposés.

I.6 Simulations d'empilement

Plusieurs études ont abordé le sujet des interactions entre impacts rapprochés. Yin *et al.* [36] ont considéré (par des simulations EF avec LS-DYNA en 2D) les interactions

« horizontales », c'est-à-dire celle des particules dont les impacts sont simultanés, et « verticales », qui signifie que les impacts se situent au même endroit mais à des instants différents. Dans le premier cas, l'influence réciproque entre particules se manifeste avec une répulsion à l'impact et le développement d'une composante horizontale de vitesse. Dans le deuxième cas, on assiste à l'« effet matelas », c'est-à-dire que la première particule absorbe l'énergie cinétique de la deuxième et se déforme d'avantage. Cet effet est d'autant plus important que la distance verticale entre particules est réduite. Des simulations avec cinq particules, organisées en deux groupes séparés par une distance verticale, ont été aussi réalisées. Les distances horizontales entre particules ont été variées entre 1 et 10 μm (cf. fig. I.15). Pour des faibles distances, les particules formaient un groupe plus compact et rentraient rapidement en contact entre elles. En cours de déformation les particules se rassemblaient dans un agglomérat compact, où le transfert d'énergie entre particule voisines est possible. Cela avait pour effet la concentration de la déformation à l'interface agglomérat-substrat et une majeure pénétration de l'ensemble. En revanche, pour une distribution plus espacée, les particules ont eu le temps de se déformer individuellement avant de rentrer en contact. Dans ce cas, les particules résultent plus déformées, à détriment d'une mineure déformation à l'interface agglomérat-substrat et une mineure pénétration.

En [37], l'impact multiple de poudre mixte (Al et Zn) a été simulé avec LS-DYNA en 2D. L'état initial et des moments successifs sont montrés en fig. I.15. L'agencement ordonné des particules fait que ces dernières subissent toutes une déformation similaire (avec des petites variations si la particule est de Zn ou d'Al). La microstructure résultante des simulations, extrêmement régulière, ne semble pas représenter celle observée.

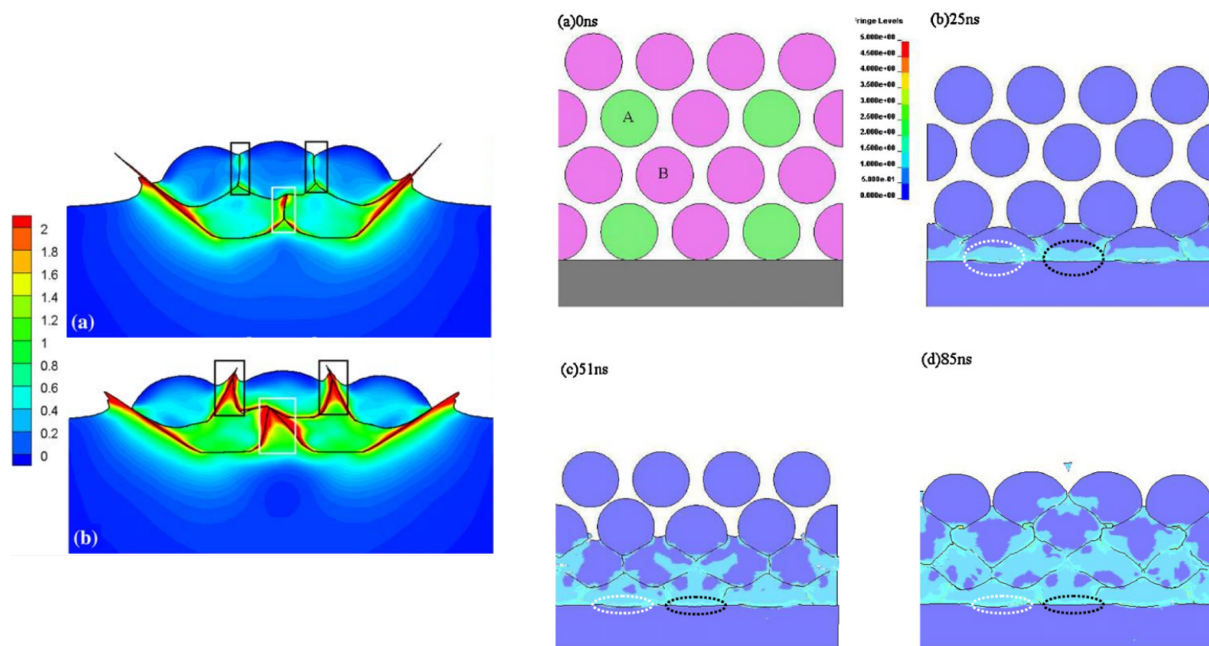


FIGURE I.15 – A gauche, déformation plastique effective (images en fausses couleurs) pour l'impact de cinq particules de cuivre sur substrat de cuivre, ayant une distance verticale initiale de : (a) 1 μm , (b) 10 μm (d'après [36]). A droite, simulation d'impacts multiples pour une poudre composite, à différents moments. (a) état initial : en vert, particules de Zn et, en rose, particules de Al. (b-d) après 25, 51 et 85 ns, respectivement : déformation plastique effective (d'après [37]).

Les simulations EF permettent de simuler les impacts successifs de plusieurs particules, à condition de fixer préalablement le nombre et la disposition des particules incidentes.

Toutes les particules doivent être déjà présentes à l'état initial du calcul. Cela implique que, surtout en 3D, la mémoire et le temps de calcul nécessaires à simuler un grand nombre de particules deviennent exorbitants. Ce fait explique l'intérêt pour une simulation simplifiée du procédé, remplaçant les éléments finis par des modèles phénoménologiques moins coûteux.

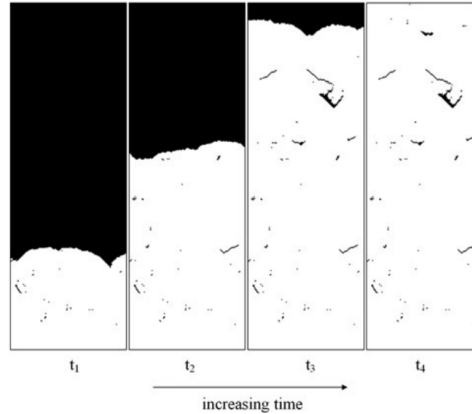


FIGURE I.16 – Résultats de la simulation d'empilement à différents moments. Chaque image représente une zone de taille $450 \times 150 \mu m$. En noir, le vide et, en blanc, le cuivre (d'après [38]).

A notre connaissance, dans le domaine du cold spray une seule tentative de modèle d'empilement a été publiée [38]. Dans cet étude un modèle phénoménologique a été mis en place en 2D. Le domaine de simulation (particule incidente, substrat et vide) est discrétisé en pixels par une grille régulière. Les particules (disques transformés en ellipses d'allongement déterminé expérimentalement) ont une vitesse en fonction de leur taille (suivant une courbe expérimentale). Quand la particule touche le substrat, les pixels en contact sont redistribués autour de la particule (par un algorithme non spécifié), qui voit sa vitesse diminuée proportionnellement au nombre de pixels déplacés. Quand cette vitesse est inférieure à un certain seuil, le splat est arrêté et absorbé par le substrat, avec lequel il se confond. Une autre particule est alors générée et rentre dans le domaine de simulation. Par cette approche, on perd l'information sur la microstructure. Les paramètres du modèle sont calés pour reproduire les taux de porosité observés expérimentalement.

La construction expérimentale d'un dépôt plasma ou cold spray peut être assimilée à un empilement de splats aléatoirement répartis sur une surface. Matheron et Serra [39] [40] ont défini, entre autres, les cadres de toute modélisation ensembliste par la morphologie mathématique. La microstructure d'un dépôt, considérée comme une composition tridimensionnelle de formes, peut s'apparenter à la construction d'un ensemble par répartition aléatoire d'objets, appelée aussi schéma booléen. Le processus suit principalement trois étapes : implantation des points suivant un processus de Poisson de densité constante, implantation d'un grain primaire de forme connue (sphère, polyèdre, etc.) en chaque point du processus de Poisson et, enfin, calculs de vérification afin de confirmer les hypothèses de départ.

Des simulations de microstructure utilisant ce type d'approche ont déjà été réalisées pour des dépôts plasma [42] [43] [44]. Elles suivent le principe d'empilement de formes par convolution, principe justifié par le fait que les splats s'additionnent en épousant complètement la géométrie de la surface impactée. Cette hypothèse repose sur les observations microstructurales de dépôt plasma : pour ce procédé, les particules de poudre sont projetées fondues. Pour ces simulations, les particules allant être déposées ont été assimilées à des particules déjà déformées. Dans la ligne de ces travaux, G. Rolland a simulé la

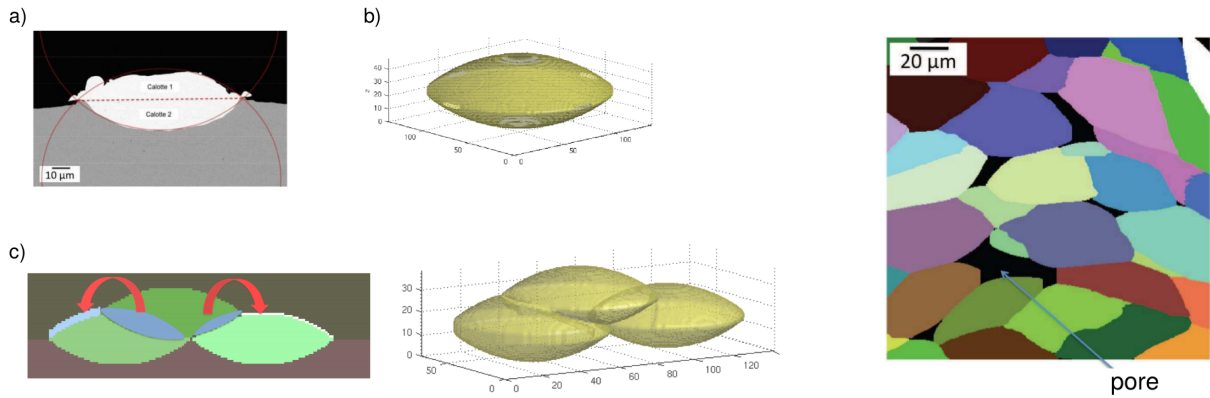


FIGURE I.17 – A gauche, a) et b), décomposition géométrique d'un splat réel, c) et d), répartition du volume d'intersection à l'impact. A droite, section d'un dépôt obtenu par le modèle d'empilement. (tirées de [41]).

construction d'un dépôt cold spray [41]. Pour ce procédé, les particules, projetées à froid, n'épousent plus la surface du substrat et des autres splats sans en influencer la géométrie. Les particules sont modélisées par l'intersection de deux calottes sphériques, comme montré en fig. I.17(a). Au contact avec le substrat, le splat s'enfonce proportionnellement à sa vitesse et le volume intersecté est reporté sur les surfaces libres (c'est-à-dire les surfaces des particules environnantes qui ne sont pas en contact avec d'autre solide). La figure I.17 montre une section d'un dépôt obtenu par ce modèle.

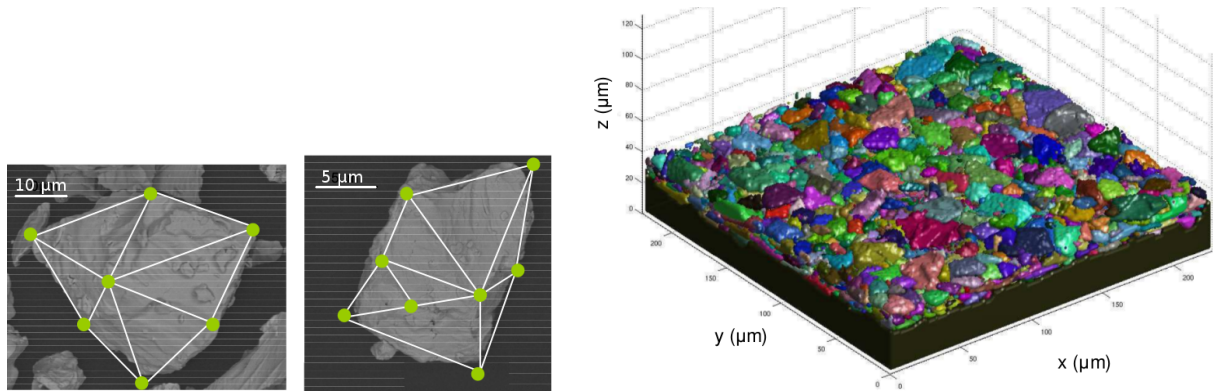


FIGURE I.18 – A gauche, modélisation des particules par individuation des sommets et triangulation. A droite, exemple d'un dépôt obtenu par simulation numérique (24 couches, taux de rebonds de 33 %) (tirées de [45]).

Dans la thèse de Laure-Line Descurnings [45], une approche différente à la modélisation d'empilement a été développée. Les particules sont modélisées par des polyèdres convexes, directement ajustés aux images MEB de la poudre (cf. fig. I.18). A l'impact, l'enfoncement moyen est estimé à deux fois la hauteur de la particule pour un splat sur substrat et à la moitié de la hauteur pour une particule s'écrasant sur d'autres splats. Le volume de l'intersection ainsi produite est reporté, sous forme de bourrelet, sur la surface libre. L'oxydation des poudres est tenue aussi en compte. L'effet principal, révélé expérimentalement, est que l'augmentation de la teneur en oxygène produit la hausse du nombre de rebonds. En simulation donc un phénomène de rebond aléatoire a été ajouté : une particule, déposée selon les lois détaillées précédemment, peut être supprimée selon une certaine probabilité, fixée par le taux de rebonds. La figure I.18 montre un exemple de dépôt, obtenu avec un taux de rebonds de 33 %.

Dans les modèles d'empilements étudiés, les déformations provoquées par les impacts des particules n'ont été traitées que empiriquement. En particulier, les algorithmes utilisés pour simuler les déplacements de la matière à l'impact étaient fondés sur des règles empiriques. De plus, un seul modèle ([1] et [45]) considérait des particules irrégulières. Ces dernières n'étaient toutefois modélisées qu'à partir d'images en 2D au MEB.

Chapitre II

Matériaux et procédés

II.1 Matériaux de l'étude

L'étude est centrée sur la projection de tantale sur cuivre. La poudre de tantale utilisée, fournie par HC-Starck, était la Amperit®150.074 de type fondue et broyée. Le substrat était du cuivre.

II.2 Mesures de dureté

Afin de déterminer la dureté Vickers des dépôts ou des poudres enrobées dans une matrice de résine époxydique, un microduromètre Buehler Micromet 5124 est disponible au Centre des Matériaux. Lors des indentations, une charge variant de quelques g à 0,5 kg a été maintenue durant 10 s. De plus, il est possible de programmer des lignes d'indentations afin de réaliser des profils au sein de l'épaisseur des dépôts. Les indentations sont pratiquées sur des échantillons polis jusqu'au grade 4000 au minimum.

II.3 Granulométrie laser

La granulométrie laser permet de déterminer la répartition des tailles des particules dans la poudre, mais elle ne donne aucune information sur la forme. Dans cet étude, le granulomètre laser Mastersizer 3000 (fig. II.1), produit par Malvern, a été utilisé. La technique de mesure est fondée sur la théorie de Mie de l'interaction de la lumière avec la matière. L'application de cette théorie demande une connaissance des indices de réfraction et d'absorption du matériau. De plus, l'hypothèse de sphéricité des particules est à la base du modèle. Plus de détails sont donnés dans le manuel de l'instrument [46].



FIGURE II.1 – Granulomètre laser Mastersizer 3000

Les mesures peuvent être effectuées par voie sèche ou humide : dans le premier cas la poudre est dispersé dans un flux de gaz, dans le deuxième dans un liquide. La poudre passe donc à travers d’une cellule optique, où un ou plusieurs lasers illuminent les particules. Des capteurs optiques mesurent la lumière diffusée et c’est à partir de ces données que la théorie de Mie permet de calculer la distribution granulométrique de la poudre. Les particules sont divisées en classes de taille, en fonction du diamètre de la sphère équivalente, c’est-à-dire, de la sphère ayant le même volume. L’histogramme résultant est « en volume » : il représente la fraction du volume total correspondante à chaque classe de taille.

II.4 Microtomographie et laminographie

Des essais ont été réalisés au laboratoire Navier de l’Ecole des Ponts et Chaussées ParisTech, ainsi qu’à l’ESRF (European Synchrotron Radiation Facility) de Grenoble. La première dispose d’un tomographe de laboratoire, où le rayonnement X est émis à partir d’une cible métallique irradiée par un faisceau d’électrons. Le faisceau résultant est polychromatique et divergent sous la forme d’un cône. La résolution est ajustée par le déplacement de l’échantillon entre la source et la dalle de détection, la condition étant que l’échantillon reste dans le cône éclairé par les rayons X. L’intensité du faisceau est inversement proportionnelle au carré de la distance. Le temps d’acquisition dépend de la résolution désirée ainsi que du matériau. Le tantale étant très atténuants à cause d’un numéro atomique élevé, les images produites étaient flues et pas assez résolues. Pour ces raisons, on a décidé de recourir à la tomographie au synchrotron de l’ESRF. Plusieurs campagnes ont été réalisées sur les lignes ID19 et ID15 (la dernière à plus haute énergie). Le rayonnement synchrotron présente de nombreux avantages par rapport aux sources X de laboratoire. D’abord le faisceau X est bien plus intense et peut arriver à des énergies plus élevées. Eventuellement, seule une partie du spectre est utilisée après le passage dans un monochromateur. De plus, le faisceau est parallèle, ce qui facilite la reconstruction par rapport à un faisceau divergent. Avec un tel dispositif, le rapport signal/bruit reste très élevé tout en ayant un temps de pose plus faible. La qualité des images s’en trouve fortement améliorée par rapport à un tomographe de laboratoire.

La résolution était de $0,77 \mu m/voxel$ sur la ligne ID19 et de $1,1 \mu m/voxel$ sur ID15. Pour des matériaux aussi atténuant que le tantale, le facteur limitant est l’épaisseur de la matière traversée par le faisceau. Cela est déterminé par les coefficients d’atténuation massique (μ/ρ), qui changent en fonction de l’énergie du faisceau comme montré en fig. II.2 à gauche. Pour avoir un rapport signal sur bruit suffisamment élevé, le taux de transmission doit être supérieur à 10 %. L’épaisseur maximale des échantillons peut donc être estimé comme reporté en tableau II.1 pour les deux matériaux de l’étude à différentes énergies.

	50 KeV	100 KeV	150 KeV
Cu	0,7 mm	4,0 mm	8,2 mm
Ta	170 μm	230 μm	640 μm

TABLEAU II.1 – Epaisseur maximale des échantillons pour le cuivre et le tantale aux énergies du faisceau de 50, 100 et 150 KeV.

Les échantillons étudiés par cette méthode sont des parallélépipèdes allongés à section carré de taille autour des $0,5 \times 0,5 \times 20 \text{ mm}^3$, découpés à l’aide d’une scie à fil. Le montage expérimentale à l’ESRF est montré en Fig. II.2 où l’échantillon à balayer est fixé sur la platine tournante. La reconstruction effectuée selon le principe de la rétroprojection

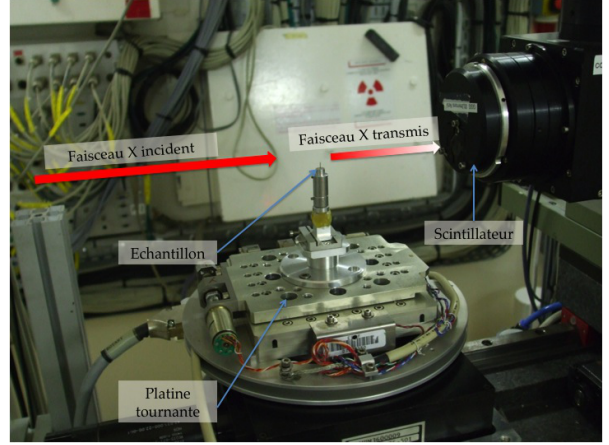
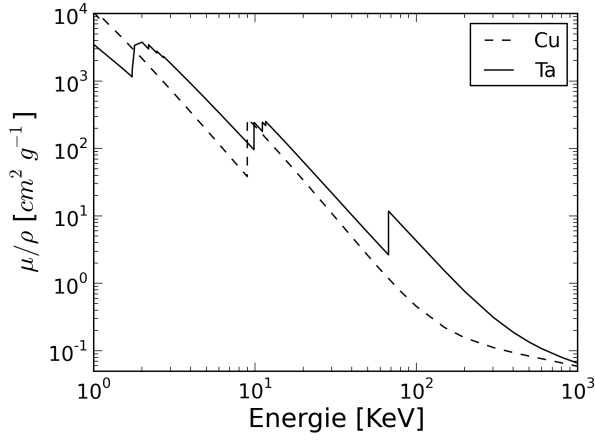


FIGURE II.2 – A gauche, variation de l’atténuation massique en fonction de l’énergie des photons incidents pour le tantale et le cuivre (d’après la base de données du NIST, National Institute of Standards and Technology [47]). A droite, montage expérimentale à l’ESRF.

filtrée [48] est effectuée après la prise des images. Une correction de mouvement entre les radiographies est réalisée afin de limiter le flou pouvant être rencontré à un tel niveau de résolution.

II.5 Bases et méthodes de l’analyse d’image

Des méthodes d’analyse d’image ont été utilisées pour le traitement des images microtomographiques (cf. chapitre III). Plusieurs livres présentent une discussion complète de l’analyse d’image (voir, par exemple, [49] et [40]).

Les images numériques 2D sont constituées de « pixels » (de l’anglais « picture éléments »). Le contenu de chaque pixel détermine le type d’image. Trois types d’image sont utilisés dans cet étude : l’image binaire, l’image en niveaux de gris et l’image multi-canal, décrites ci-après. L’analogue du pixel des images 2D prend le nom, en 3D, de voxel.

Quelques définitions de base dans le domaine de l’analyse d’image sont données dans la suite.

Image binaire : image a valeurs binaires ; chaque pixel (ou voxel) ne peut assumer qu’une des deux valeurs (vrai/faux, 0/1 ou encore 0/255 pour les images de type *UINT8*).

Image en niveaux de gris : chaque pixel (ou voxel) peut assumer une valeur comprise entre 0 et T_{\max} (la profondeur de l’image). T_{\max} détermine la quantité de mémoire nécessaire à enregistrer la donnée. Deux types d’images en niveaux de gris sont utilisés dans cette thèse : *UINT8* (8 bit, $T_{\max} = 255$) et *UINT16* (16bit, $T_{\max} = 35000$).

Image multi-canal : chaque pixel (ou voxel) contient N valeurs, chacune comprise entre 0 et $T_{i,\max}$. Une image à N canaux est équivalente à N images en niveaux de gris, une pour chaque canal. Les images en couleurs appartiennent à cette catégorie. En effet, selon le système utilisé pour décrire la couleur, les pixels contiennent 3 ou 4 valeurs : en RGB, par exemple, un vecteur 3D est contenu dans chaque pixel, donnant les valeurs du rouge, du vert et du bleu.

Seuillage : l’opération consiste à imposer la valeur 1 à tous les pixels dans un certain intervalle de gris $[t_1, t_2]$ et la valeur 0 aux autres.

Labellisation : transformation d'une image binaire en une image en niveaux de gris. Elle consiste en attribuer une valeur différente aux pixels de chaque composante connexe.

Elément structurant : petit ensemble, utilisé pour sonder l'image. La majorité des opérations morphologiques utilisent un élément structurant.

Erosion et dilatation : seuls les définitions pour des images binaires sont données ici. Celles pour les images en niveaux de gris existent mais ne seront pas données ici (voir par exemple [49]). L'érosion d'un ensemble X par l'élément structurant B s'écrit $\epsilon_B(X)$ et est définie comme l'ensemble des points x tels que B est inclus dans X quand son centre est situé en x :

$$\epsilon_B(X) = \{x \mid B_x \subseteq X\} \quad (\text{II.1})$$

La dilatation est l'opération complémentaire de l'érosion. La dilatation d'un ensemble X par l'élément structurant B s'écrit $\delta_B(X)$ et est définie comme l'ensemble des points x tels que B intersecte X quand son centre est situé en x :

$$\delta_B(X) = \{x \mid B_x \cap X \neq \emptyset\} \quad (\text{II.2})$$

Ouverture et fermeture : l'ouverture d'une image f par l'élément structurant B s'écrit $\gamma_B(f)$ et est définie comme l'érosion de f par B , suivie de la dilatation avec l'élément réfléchi \hat{B} .

$$\gamma_B(f) = \delta_{\hat{B}}[\epsilon_B(f)] \quad (\text{II.3})$$

La fermeture, en revanche, est définie comme la dilatation de f par B , suivie de l'érosion avec l'élément réfléchi \hat{B} .

$$\phi_B(f) = \epsilon_{\hat{B}}[\delta_B(f)] \quad (\text{II.4})$$

Gradient morphologique : ils existent plusieurs définitions du gradient de l'image f . Celle du gradient morphologique symétrique est utilisée ici et consiste en la soustraction (pixel par pixel) de l'image dilatée $\delta(f)$ à l'image érodée $\epsilon(f)$.

Segmentation : processus de division d'une image en différentes parties, chacune ayant certaines propriétés. En langage mathématique, la segmentation d'une image f est la partition de son domaine de définition Df dans N ensembles disjoints et non vides X_i tels que leur union reconstitue Df . Après segmentation, il est possible d'effectuer des mesures sur les régions ainsi repérées et d'étudier ainsi les relations entre les différentes parties de l'image. La segmentation représente, donc, une étape clé vers l'analyse quantitative.

Watershed : technique de segmentation. Pour en comprendre le fonctionnement, l'application à une image 2D (dite $Im(x, y)$) est détaillée dans la suite. Chaque image en valeurs de gris $Im(x, y)$ peut être considérée comme une surface $z = Im(x, y)$: une élévation topographique peut être associée à chaque pixel de l'image. On considère d'abord l'image gradient, $Grad(Im(x, y))$. Cette dernière est progressivement « inondée » à partir des marqueurs. A chaque marqueur correspond un bassin. Lorsque deux bassins se rencontrent, une ligne (ou surface en 3D) de partage des eaux est créée. Quand le procédé est complet, l'image étant complètement inondée, il y aura autant de zones segmentées que de marqueurs. Les surfaces de partage des eaux sont les frontières des différentes parties de l'image segmentée.

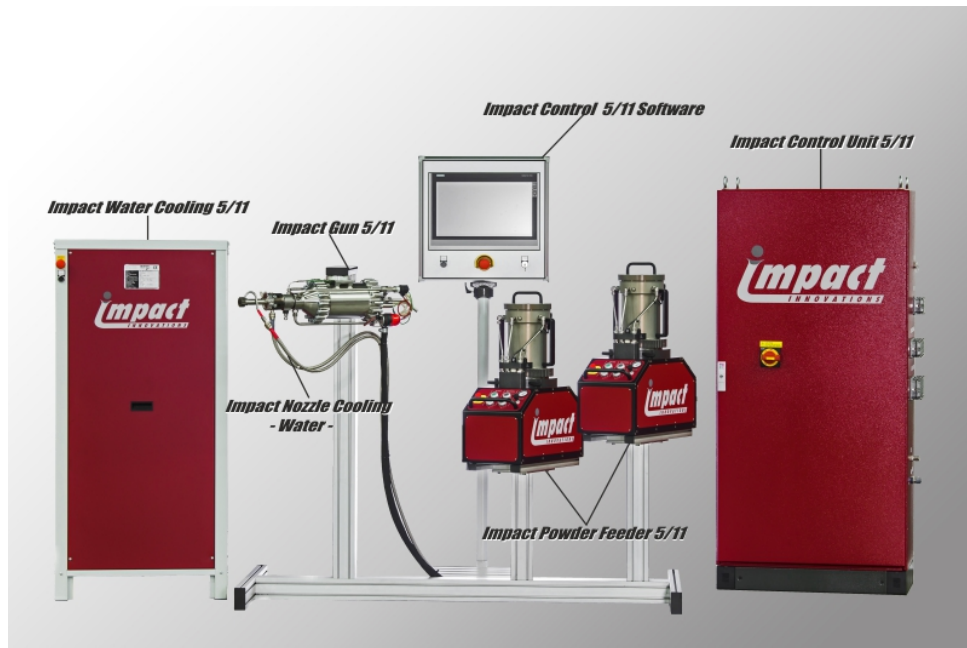


FIGURE II.3 – Système de projection cold spray « Impact Spray System 5/11 », fabriqué par « Impact Innovations GmbH » (Haun, Allemagne).

II.6 Projection par cold spray

II.6.1 Installation de dépôt

L'installation cold spray au sein du laboratoire de projection thermique du CEA/Le Ripault a été utilisé pour la fabrication des dépôts étudiés dans cette thèse. Le système (« Impact Spray System 5/11 » fabriqué par « Impact Innovations GmbH » Haun, Allemagne) est illustré sur la figure II.3. Il est constitué d'un pistolet (qui contient les éléments chauffant le gaz de projection, cf. fig. II.4), de deux distributeurs de poudre, d'un système de refroidissement de la buse à l'eau et d'une unité de contrôle. Les valeurs maximales de 50 bar et 1100 °C peuvent être atteintes, respectivement, par la pression et la température du gaz de projection. Le système était installé dans une cabine robotisée, le pistolet étant monté sur un robot à six axes, doté d'un septième axe de rotation.



FIGURE II.4 – Pistolet du système « Impact Spray System 5/11 ».

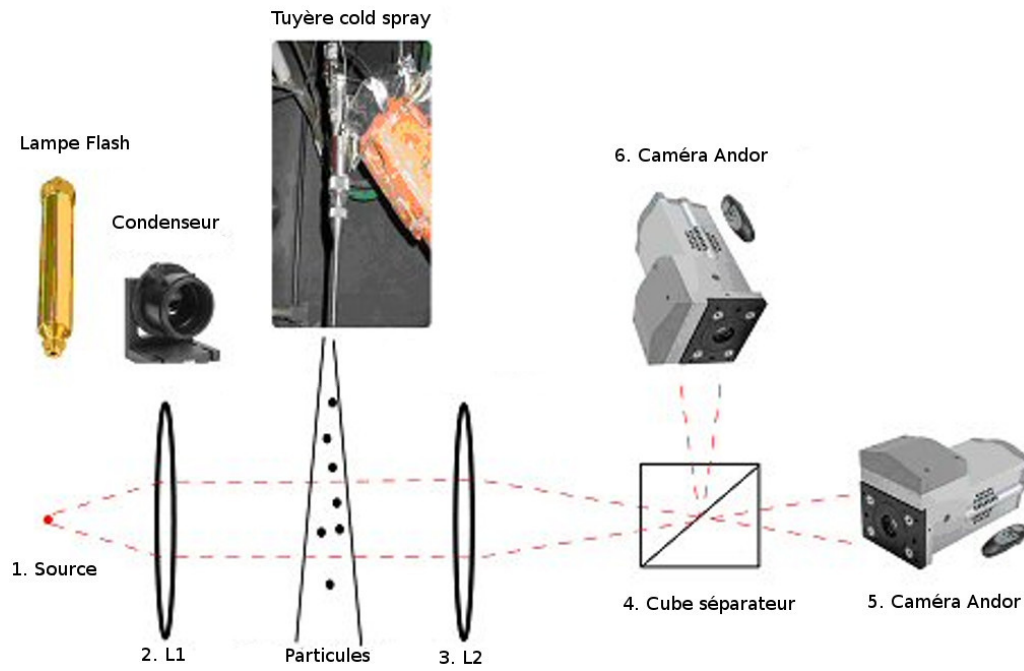


FIGURE II.5 – Schéma du dispositif expérimental de mesure de vitesse des particules en vol.

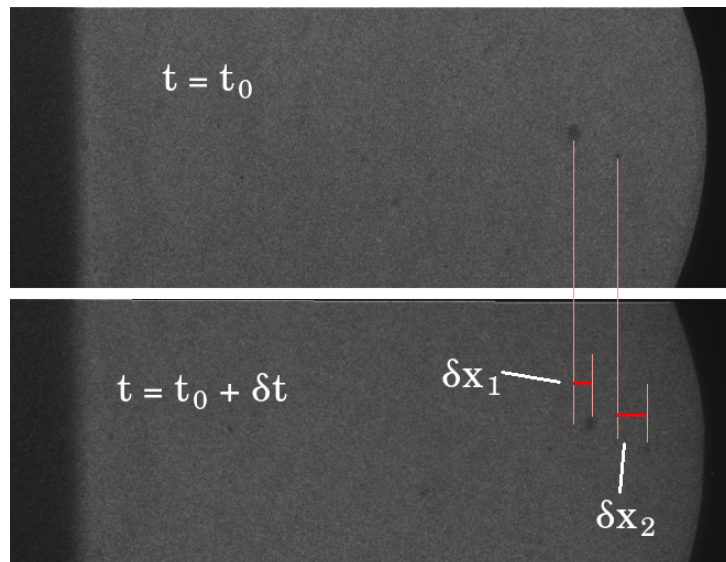


FIGURE II.6 – Exemple de mesure de vitesse. Un intervalle temporel δt de 100 ns sépare les deux images. La mesure des distances parcourues dans ce laps de temps ($\delta x_1 = 65\mu m$ et $\delta x_2 = 102\mu m$) permet l'estimation des vitesses.

II.6.2 Mesure des vitesses des particules en vol

Une expérimentation spéciale a été conçue et installée au laboratoire de projection thermique du CEA/Le Ripault, pour mesurer aux mêmes temps par voie optique taille et vitesse des particules en vol. Un schéma du dispositif expérimental est montré en fig. II.5. Une lampe flash illumine les particules. Le faisceau lumineux est focalisé par un condenseur pour éclairer le jet cold spray en sortie de buse. Ensuite, la lumière traverse un cube séparateur, qui la sépare en deux faisceaux. Deux caméras ultra-rapides, préalablement synchronisées, prennent deux images séparées par un intervalle de temps très court (100 ns). Les images et les mesures qui permettent l'estimation de la vitesse sont montrées en fig. II.6. Les particules sont repérées individuellement sur les deux images. La connaissance de l'intervalle temporel δt qui sépare les deux images et les distances δx_1 et δx_2 , parcourues dans ce laps de temps par les deux particules, permet l'estimation des vitesses individuelles et, simultanément, de la taille des particules.

II.7 Coulage en bande

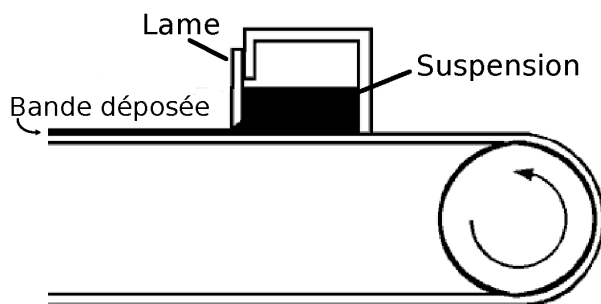


FIGURE II.7 – Technique de coulage en bande

Il s'agit d'une méthode pour déposer une suspension contenant une poudre (normalement de céramique) en bandes d'épaisseur constante. La méthode est utilisée couramment, entre autres, pour la fabrication des piles à combustibles à haute température. La technique, illustrée en fig. II.7, commence avec la préparation d'une suspension de poudre et de constituants organiques (diluants, liants, plastifiants, dispersants, etc.). Cette préparation est, ensuite, étalée par le mouvement relatif d'un réservoir ou sabot contenant la suspension et d'un support. La suspension est ainsi laminée par son passage entre la lame du réservoir et le support, ce qui confère à la bande déposée une épaisseur constante sur toute sa longueur. La hauteur du couteau du réservoir par rapport au support détermine l'épaisseur de la bande. Le dépôt ainsi obtenu doit, enfin, être cuit. Cela permet, d'abord, l'élimination des composants organiques et, ensuite, le frittage de la poudre. Le Centre des Matériaux dispose d'une machine pour coulage en bande « Elcometer®4340 Motorised - Automatic film applicator » (Elcometer Limited, Edge Lane, Manchester M43 6BU, England).

II.8 Dépôt chimique en phase vapeur sur lit fluidisé

Le dépôt chimique en phase vapeur (CVD, de l'anglais « Chemical Vapor Deposition ») est un procédé où un ou plusieurs précurseurs en phase gazeuse réagissent et/ou se décomposent à la surface d'un substrat pour générer le dépôt désiré. Le CVD sur lit fluidisé est une des techniques la plus efficaces pour appliquer un revêtement à chaque particule d'une

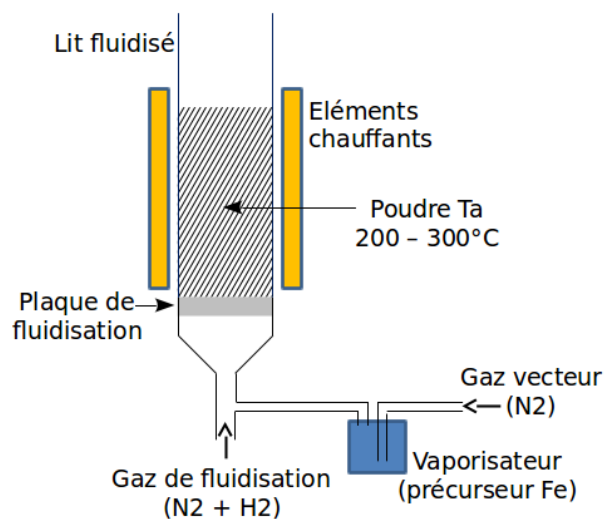


FIGURE II.8 – Schéma illustrant la technique du dépôt chimique en phase vapeur sur lit fluidisé.

poudre [50]. Deux procédés sont combinés dans cette technique : le dépôt du revêtement et le transport de la poudre dans la zone active, qui le plus souvent s'opère par l'injection d'un gaz . La figure II.8 présente un schéma de description de la technique. Ce procédé a été utilisé pour appliquer une couche de contraste pour la microtomographie des splats Ta sur Ta (cf. § VI.3). Ces opérations de revêtement de la poudre ont été effectuées par l'entreprise LIFCO/Saint-Etienne.

Chapitre III

Etude morphologique 3D de la poudre

Nomenclature

Mesures morphologiques	
V	Volume
S	Surface
r_m	Rayon moyen
r_{eq}	Rayon équivalent
Sph	Sphéricité
I_1, I_2, I_3	Moments d'inertie principaux
λ_1, λ_2	Moments d'inertie principaux adimensionnels
β_1, β_2	Boîte englobante normalisée
Imb	Imbrication
Autres symboles	
P_i	Composantes principales
K	Nombre de classes

III.1 Introduction

Dans la modélisation développée autour du procédé cold spray la norme courante est de ne considérer que des particules sphériques. Dans la pratique, en revanche, l'utilisation des poudres irrégulières est fréquente. L'intérêt de ces dernières se situe, entre autres, dans leurs caractéristiques aérodynamiques. Par rapport aux sphériques elles présentent, en fait, un plus grand coefficient de traînée, ce qui leur permet d'atteindre des vitesses plus élevées, à parité de conditions de projection.

Dans cette étude, la poudre de tantale utilisée est du type « fondue-broyée ». Ce procédé de fabrication est à l'origine des formes très irrégulières des particules. L'approche de modélisation de cette étude se veut innovante et attentive à bien représenter la réalité. Pourtant, le rôle de la forme de la poudre, tant dans les impacts que dans l'empilement des particules, ne peut pas être négligé. L'attention aux caractéristiques morphologiques des particules est bien présente tout au long des différentes étapes de la modélisation développée dans le cadre de la thèse. Avant de réaliser des simulations successives, la caractérisation la plus précise et détaillée de la poudre est nécessaire.

Les techniques classiques comme, par exemple, la granulométrie laser (GL dans la suite, décrite en chapitre 1) et l'observation de la poudre libre au MEB, sont limitées par le fait qu'il s'agit de caractérisations en 2D. Ces techniques ne peuvent, pourtant, rendre que partiellement les informations sur la taille et la forme, qui sont intrinsèquement de nature tridimensionnelle. Pour cette raison, la microtomographie par rayons X (MTX

dans la suite, voir le chapitre 1), qui permet l'observation en 3D des particules, a été choisie pour la caractérisation morphologique de la poudre.

Le chapitre est dédié, donc, à l'analyse des images 3D produites par MTX. La mise en place des méthodes de traitement d'image nécessaires, capables d'identifier individuellement les particules et de réaliser des mesure morphologiques quantitatives, occupe la première partie du chapitre.

L'attention se tourne, ensuite, sur l'organisation des informations récupérées. Les méthodes développées permettent, en fait, de trier les particules en classes de forme, mettant en relief la contribution spécifique de chaque groupe. Tout cela permet de fournir un cadre complet de la composition morphologique de la poudre, qui va bien au-delà de ce qu'on entend couramment par « granulométrie ».

III.2 Observations préliminaires

Quelques observations préliminaires, par des techniques usuelles comme la GL et l'observation au MEB, sont présentées ici.

La GL permet de mesurer la distribution des tailles des particules dans la poudre, sans donner aucune information sur leur forme. La technique a différentes limites, surtout pour la caractérisation des poudres irrégulières. Les résultats de deux mesures, par voie sèche et par voie humide, sont montrés en figure III.1. Ici une différence nette entre les deux distributions a été remarquée, probablement due à une tendance à l'agrégation de la poudre dans l'air. Celle par voie humide a donc été retenue comme étant plus proche de la réalité.

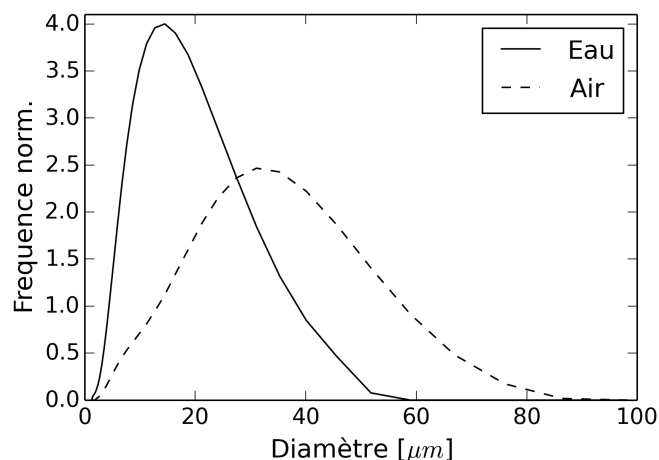


FIGURE III.1 – Résultats de la GL, par voie sèche (air) et par voie humide (eau).

L'observation de la poudre libre au MEB, présentée en figure III.2, a permis d'apprécier qualitativement la variabilité de la forme et de la taille des particules de la poudre. Cette observation se limite à une vue 2D. Elle n'a donc pas pu être utilisée pour une caractérisation complète de la forme. Pour surmonter ces limites, la MTX (illustrée dans le chapitre 1) a été choisie comme méthode d'observation.

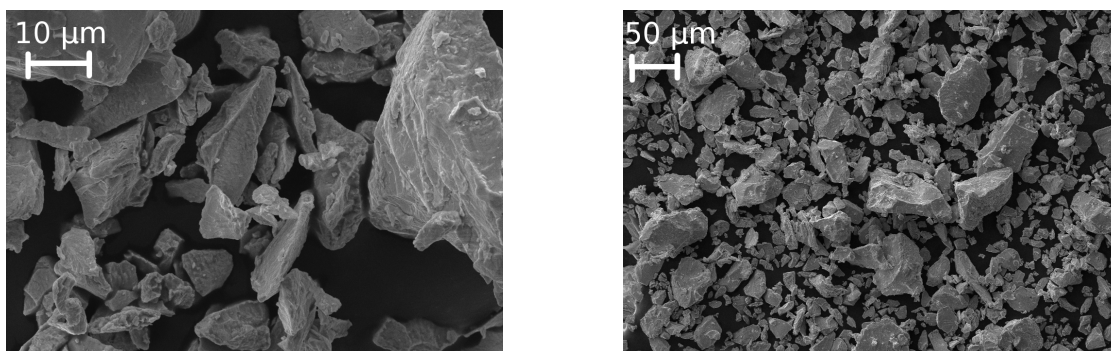


FIGURE III.2 – Vue au MEB à deux différents agrandissements de la poudre de tantale utilisée pour les projections.

III.3 Données microtomographiques

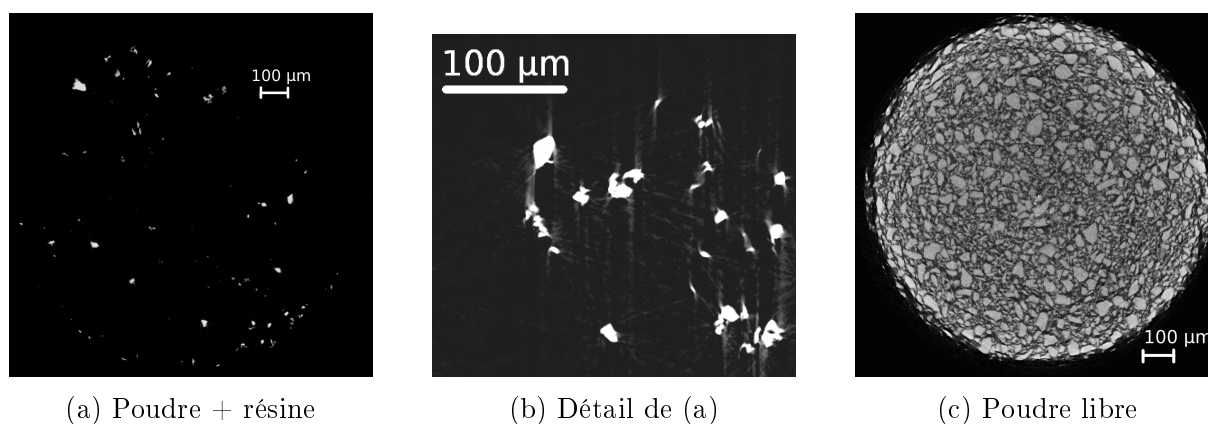


FIGURE III.3 – Trois sections des images 3D des échantillons de poudre. (a) : Poudre dispersée et enrobée dans une résine à froid. (b) : Détail de (a), à contraste et luminosité augmentés. Des halos gris (les artefacts) sont visibles autour des particules. (c) : Poudre dans un capillaire sans utilisation de résine.

Le tantale, du fait d'avoir un nombre atomique élevé et donc un grand pouvoir d'atténuation des rayons X, est un matériaux difficilement observable par MTX. Les installations de laboratoire ne permettent pas d'atteindre la qualité du faisceau nécessaire à réaliser des images des particules de tantale. L'utilisation de la radiation du synchrotron de l'ESRF (« European Synchrotron Radiation Facility », Grenoble) a permis d'obtenir les images en 3D des particules et des splats utilisées dans cette thèse.

Dans la première campagne d'observations à l'ESRF, des images microtomographiques (dites aussi « scans ») de la poudre ont été obtenues à partir de deux échantillons contenant de la poudre de tantale. Pour le premier échantillon, la poudre a été d'abord dispersée dans une résine d'enrobage bi-composante à froid. Le mélange a été, ensuite, introduit dans un capillaire un verre d'environ 1 mm de diamètre. Pendant le temps de solidification de la résine, le capillaire a été maintenu en mouvement, afin de maintenir une distribution homogène de la poudre dans la résine. Un mouvement de rotation empêche, en effet, la concentration par gravité de la poudre sur un seul côté du capillaire. Pour le deuxième échantillon, la poudre est tout simplement entassée dans un capillaire similaire, sans utilisation de résine.

La différence principale entre les deux techniques réside dans la densité d'entassement de la poudre, bien supérieure dans le deuxième échantillon. En conséquence, la distance

moyenne entre les particules est beaucoup plus grande pour le premier échantillon, ce qui facilite le traitement de l'image et l'extraction des particules.

Un autre aspect à considérer est la présence de résine qui entraîne quelques complications. En effet, l'absorption du faisceau par la résine peut déformer cette dernière et faire bouger légèrement les particules. Pendant la prise d'image à l'ESRF, ce phénomène a été remarqué en comparant la première radiographie, prise à angle de rotation nul, avec celle du contrôle, prise après le scan aussi à angle de rotation nul. Dans les deux images, on perçoit une petite différence dans les positions des particules avant et après le scan. Cela affecte le procédé de reconstruction de l'image 3D finale. En effet, pour passer de la séquence de projections à différents angles de rotation à l'image finale en 3D, l'algorithme de reconstruction utilisé est fondé sur deux hypothèses : 1) le faisceau est monochromatique et 2) le mouvement de l'objet est limité à la rotation autour d'un axe fixe. En réalité, aucune des deux hypothèses n'est respectée : d'une part, le faisceau n'est pas monochromatique, d'autre part, on a observé un mouvement des particules de la poudre. L'image résultante est, par conséquent, affectée par des défauts dits artefacts de reconstruction. Ces défauts se traduisent par un contour de particules peu net et aussi sous forme de halos allongés, plus clairs que le fond et plus foncés que les particules.

Les artefacts sont visibles sur la figure III.3b, qui montre un détail d'une section de l'image reconstruite. Le contraste et la luminosité ont été augmentés pour rendre plus visibles les artefacts, qui apparaissent en gris et qui ressemblent à des rayons de lumière partant des particules.

Dans le cas de la poudre libre (Fig. III.3c), les artefacts sont réduits, grâce à l'absence de résine. En revanche, on constate un gradient d'intensité, l'extérieur étant plus brillant que l'intérieur. Ce phénomène, absent pour la poudre dispersée dans la résine, n'empêche pas pour autant l'analyse et pourrait être aisément corrigé. Problématiques sont, en revanche, la proximité excessive des particules et le contraste plus faible de l'image, qui préjugent de l'exploitabilité des résultats. Pour cette raison, seul le scan du premier échantillon (celui de la figure III.3a) a été retenu pour l'analyse.

La configuration de l'appareil expérimental au moment de la prise des images a donné une résolution de $0,77 \mu\text{m}/\text{voxel}$ (longueur des côtés des voxels). Dans les images après reconstruction, chaque voxel représente la valeur de l'absorbance locale, codée sous la forme d'un réel en 32 bits. Il faut noter que la taille des images est de $1600 \times 1560 \times 2024$ voxels, et, par conséquent, la taille du fichier avoisine les 20 Go. Pour pallier ce problème de mémoire, les données ont tout d'abord été converties en « unsigned 8-bit integer » (UINT8 dans la suite). Pour ce dernier type d'image, les valeurs sont comprises entre 0 (noir) et 255 (blanc). La conversion a été effectuée en plusieurs étapes. Tout d'abord, les valeurs minimum et maximum ont été calculées pour l'image de départ. Ensuite, l'intervalle entre ces deux valeurs a été divisé en 255 parties, en correspondance avec les valeurs permises par le format UINT8. Le spectre continu de l'image en 32 bits est donc devenu un histogramme pour celle de type UINT8. La transformation des données a été réalisée avant téléchargement des données ESRF donc l'image en 32 bits n'a pas été sauvegardée. Cette conversion a permis de réduire d'un facteur 4 le poids des images, tout en évitant que la perte d'information soit néfaste au processus de segmentation.

III.4 Construction d'une bibliothèque 3D des particules de poudre

Les images reconstruites ont été traitées, afin d'extraire les particules et les séparer les unes des autres. A cette fin, des procédures algorithmiques ont été mises en place

en Python et programmées grâce à la librairie SMIL (« Simple Morphological Image Libraries »), développée par M. Faessel au Centre de Morphologie Mathématique (CMM, MINES-ParisTech).

III.4.1 Algorithme de traitement

Une introduction aux concepts de base de l'analyse d'image est donnée dans le chapitre 2. La procédure utilisée pour la segmentation de l'image va être détaillée maintenant pas à pas.

1. Division de l'image en 64 parties : il faut considérer que plusieurs images dérivées (par exemple l'image gradient et celles contenant les résultats) sont nécessaires en mémoire en même temps, pour le traitement. Pour cette raison, la demande en mémoire peut devenir très vite exorbitante. Ce problème a été résolu en traitant l'image par morceaux. D'abord elle est découpée en 8 parties, en utilisant les 3 plans médians. Chaque partie subit à son tour la même division. L'image initiale a été ainsi divisée en 64 sous-images \mathcal{I}_j . Ce procédé présente cependant un problème. Pendant la division de l'image, un certain nombre de particules, celles intersectées par les plans médians, se trouvent, en effet, coupées en deux. Pour récupérer toutes les particules en entier, des sous-images - dites $\tilde{\mathcal{I}}_j$ - légèrement plus grandes que les \mathcal{I}_j , ont été découpées de l'image initiale. Lors qu'une particule touche un bord de \mathcal{I}_j , elle est susceptible d'avoir été coupée en deux. Elle peut, en revanche, être retrouvée en entier dans une des images élargies $\tilde{\mathcal{I}}_j$.
2. Seuillage et labellisation : le fait que le cœur des particules soit assez saturé a été utilisé, pour qu'un simple seuillage de l'image permette de l'isoler. Vu l'homogénéité de l'image, une valeur de seuil globale de 205 a été choisie empiriquement pour sélectionner une large majorité de particules. En appliquant le seuillage, une image binaire a été obtenue, qui contient les cœurs des particules, c'est-à-dire leur partie la plus saturée. Cette image a été en suite labellisée, pour obtenir une image des marqueurs qui sera utilisée dans l'étape suivante.
3. Segmentation : l'algorithme, dit « partage des eaux guidé par marqueurs » et expliqué dans le chapitre 2, a été utilisé pour la segmentation de l'image.

A ce point, une image segmentée est produite et la récupération et le stockage des particules sont possibles. La fonction « watershed » (terme anglais pour « partage des eaux ») de SMIL produit deux images, une binaire pour la ligne de partage des eaux (surface en 3D) et une labellisée représentant les bassins, ayant les mêmes labels que les marqueurs. Cette dernière est utilisée pour l'extraction des particules. Enfin, la partie de l'image correspondant à la boîte englobante de chaque particule a été copiée et sauvegardée. Leur ensemble constitue la bibliothèque 3D. De plus, les mêmes parties de l'image en niveaux de gris ont été copiées et sauvegardées afin de pouvoir, dans un deuxième temps, traiter les agrégats qui sont le sujet de la section suivante.

Pour la visualisation des particules, la librairie VTK a été utilisée. Elle permet de générer des triangulations de surface et leur lissage, ce qui permet d'éliminer l'effet d'escalier, caractéristique des images voxelisées. Des exemples des particules de la bibliothèque sont montrés en figure III.4.

III.4.2 Séparation des agrégats

On constate que certaines particules sont, par endroit, en contact, ou du moins assez proches pour que l'algorithme de binarisation les considère comme une particule unique.

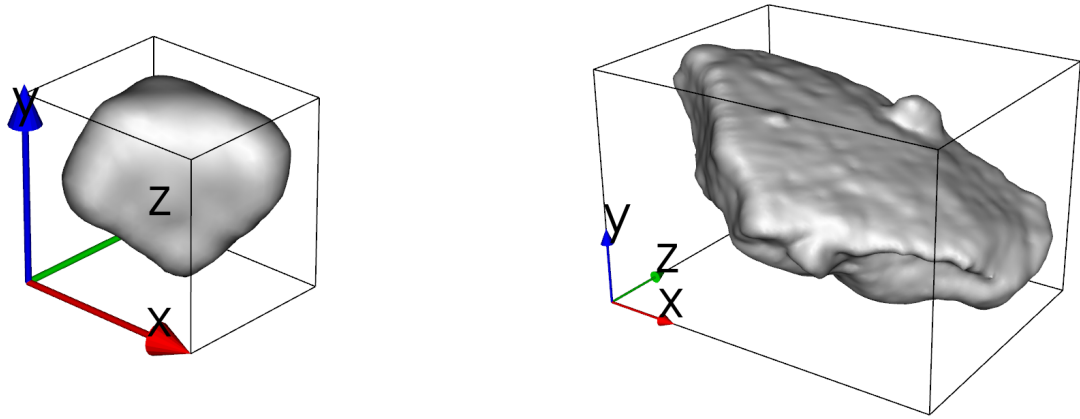


FIGURE III.4 – Exemples de particules de la bibliothèque 3D. La librairie VTK a été utilisée pour la visualisation en 3D. La surface a été lissée, pour éliminer l’effet à « escalier » des images voxelisées. L’échelle est donnée par les axes, dont les flèches ont une norme de $15 \mu m$.

C’est ce que l’on appelle un agrégat. Pour résoudre ce problème, un algorithme a été mis en place afin de séparer les agrégats. Trente d’entre eux ont été préalablement sélectionnés et, sur cet ensemble réduit, l’algorithme a pu être mis au point et validé. Des exemples d’agrégats sont présentés en figure III.5.

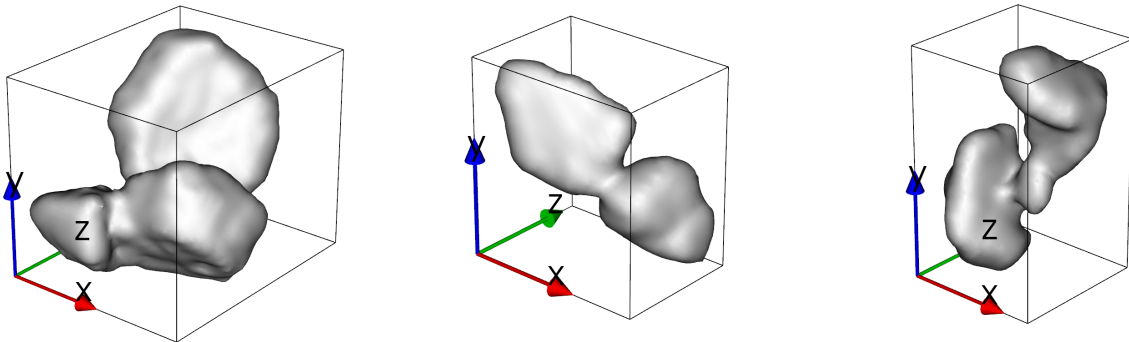


FIGURE III.5 – Exemples d’agrégats avant séparation. La méthode de visualisation 3D et l’échelle sont identiques à celles de Fig. III.4.

Là où des particules sont très proches les unes des autres, il peut exister une certaine continuité de l’intensité de l’image en passant d’une particule à la voisine. Si l’intensité est suffisamment élevée dans cette partie, les cœurs des particules, individualisés par seuillage (deuxième étape de l’algorithme de traitement, voir la section précédente), ne sont pas discernables. Ils constituent une seule composante connexe et, pour cette raison, sont considérées par l’algorithme de partage des eaux comme un agrégat, au lieu de plusieurs particules individuelles.

Pour séparer les agrégats, il a fallu intervenir sur le seuillage qui permet d’isoler les cœurs des particules. La valeur du seuil appliqué ne doit pas être la même pour toutes les particules et doit varier selon les cas. Fondé sur cette idée, l’algorithme de traitement expliqué ci-après a été mis en place. L’image binarisée est appelée im_B , l’image originale im_G et le volume de im_B est appelé V_0 . Dans la suite, les étapes qui constituent

l'algorithme sont détaillées :

1. Un premier seuil est fixé à la valeur maximale S_0 , observée dans im_G .
2. im_G est seuillée à S_0 et on mesure son volume V_1 .
3. Si $V_1/V_0 < 0,24$, la valeur du seuil est baissée de 1. Dans le cas contraire, on passe à l'étape 5.
4. im_G est seuillée à la nouvelle valeur et son volume V_1 est mesuré. On retourne à l'étape 3.
5. L'image seuillée produite à l'étape précédente est utilisée comme marqueur pour un nouveau partage des eaux sur l'image gradient de im_G .

Cette procédure s'est démontrée efficace pour l'ensemble choisi de 30 agrégats. L'algorithme de séparation a été en suite appliqué à toutes les images qui constituent la bibliothèque précédemment construite. Sur la totalité des particules, elle a permis de séparer la majorité des agrégats mais pas la totalité. En effet, l'examen visuel de la bibliothèque révèle la présence de quelques agrégat ayant échappé au processus.

III.5 Classification des particules dans la bibliothèque

La bibliothèque 3D des particules de la poudre a été utilisée pour les simulations d'impact des particules réelles en éléments finis (voir le chapitre IV). Vu le grand nombre d'objets (autour de 18000), il était impensable de simuler l'impact de chacune. La première idée a été un choix au hasard. Cependant, il aurait fallu un grand nombre de particules pour assurer une certaine représentativité. On a donc visé plutôt à extraire de façon ciblée un ensemble réduit de représentants, à utiliser pour les simulations en éléments finis. Pour cela, il s'est posé le problème des critères de choix.

Pour assurer une bonne représentativité de l'ensemble, nous avons envisagé d'effectuer une classification des formes des objets de la bibliothèque. Une fois que les particules ont été regroupées dans un certain nombre de classes de forme, l'extraction des représentants s'est faite de façon à couvrir la variété des formes présentes dans la bibliothèque.

Pour effectuer la classification, il a d'abord fallu définir des mesures de forme, c'est-à-dire trouver des indicateurs capables de quantifier les formes des objets de la bibliothèque.

III.5.1 Mesures morphologiques

Une série de mesures morphologiques a été faite sur l'ensemble des particules de la bibliothèque, avec la finalité de les caractériser quantitativement en termes de forme et taille.

1. Volume (V) : volume d'une particule mesuré en comptant le nombre de voxels et en le multipliant par la résolution volumique ($0,77^3 \mu\text{m}^3/\text{voxel}$ dans notre cas).
2. Surface (S) : en appliquant l'opérateur gradient (cf. chapitre 2) à l'image de la particule, une image binaire représentant la surface de l'objet est obtenue. Il est alors possible de compter le nombre des voxels et de le multiplier par la résolution surfacique ($0,77^2 \mu\text{m}^2/\text{pixel}$ dans notre cas) pour obtenir une estimation de la surface des objets.
3. Rapport surface/volume (S/V), calculé à partir des deux données précédentes.
4. Dimensions de la boîte englobante le long des axes principaux d'inertie (B_1 , B_2 , B_3) avec auparavant la définition du tenseur et des axes principaux d'inertie : le moment cinétique propre L d'un solide de vecteur de rotation instantané ω

s'écrit : $L = I\omega$, où I est le tenseur d'inertie. Pour les objets discrétisés, comme les particules de la bibliothèque qui sont faites de voxels, le tenseur I est donné par l'équation suivante :

$$I = \begin{pmatrix} \sum_i m_i (y_i^2 + z_i^2) & -\sum_i m_i x_i y_i & -\sum_i m_i x_i z_i \\ -\sum_i m_i x_i y_i & \sum_i m_i (x_i^2 + z_i^2) & -\sum_i m_i y_i z_i \\ -\sum_i m_i x_i z_i & -\sum_i m_i y_i z_i & \sum_i m_i (x_i^2 + y_i^2) \end{pmatrix} \quad (\text{III.1})$$

I est symétrique et défini positif donc diagonalisable dans l'espace réel. En d'autres termes, il est toujours possible de choisir un système d'axes tel que la matrice dans l'eq. (III.1) soit réelle positive et diagonale : de tels axes sont dits axes principaux d'inertie. Les moments d'inertie correspondants sont appelés moments principaux d'inertie et sont notés I_1, I_2, I_3 , avec $I_1 < I_2 < I_3$. On a choisi de mesurer les dimensions de la boîte englobante le long de ces axes, plutôt que pour des directions quelconques. Il faut remarquer que l'ordre des mesures est inversé par rapport à l'ordre des axes : le côté le plus long de la boîte englobante (ici nommé B_1) correspond au troisième axe principal, le côté le plus court (B_3) correspond au premier axe.

5. Rayon moyen (r_m), défini comme la distance moyenne entre le barycentre et les voxels constituant l'objet.
6. Rayon équivalent (r_{eq}), défini comme le rayon de la sphère ayant le même volume que l'objet. Il est simplement calculé à partir du volume de l'objet, selon la formule $r_{eq} = (3\pi V/4)^{1/3}$.
7. Sphéricité (Sph) : bien qu'il existe différentes définitions de la sphéricité en littérature, une définition plus adaptée à notre cas a été utilisée : la sphère équivalente, définie au point précédent, a été placée de façon à ce que son centre coïncide avec le barycentre de l'objet. Ensuite, le volume de l'intersection de cette sphère et de l'objet a été mesuré. La sphéricité a été définie comme le rapport entre ce volume et le volume total de l'objet. Par définition, une sphère atteint la valeur maximale de sphéricité, égale à 1. Plus un objet s'éloigne de la forme sphérique, plus sa sphéricité se rapproche de 0.

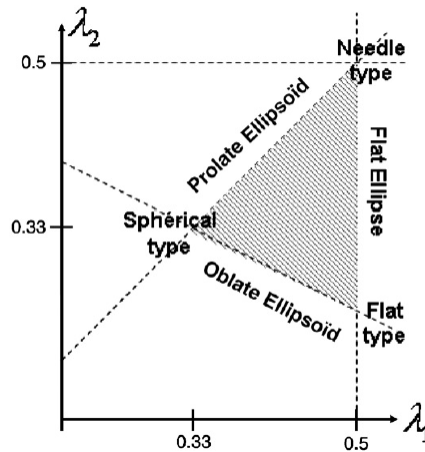


FIGURE III.6 – Moments d'inertie principaux adimensionnels. Le triangle en gris dans le plan (λ_1, λ_2) indique l'aire admissible par les inéquations (III.2), d'après [13].

8. Moments d'inertie principaux adimensionnels (λ_1, λ_2) : la définition est donnée en fonction des moments principaux d'inertie I_1, I_2, I_3 (introduits au point 4) par la formule suivante : $\lambda_i = \frac{I_i}{I_1 + I_2 + I_3}$. En conséquence, seulement 2 composantes

sont indépendantes (par exemple λ_1 et λ_2). La définition des λ_i implique les trois inéquations suivantes, qui limitent les couples possibles λ_1 et λ_2 dans le triangle en gris en figure III.6 :

$$\lambda_i < 0.5, \quad \lambda_1 > \lambda_2, \quad \lambda_2 > 0.5(1 - \lambda_1) \quad (\text{III.2})$$

Pour chaque objet, λ_1 et λ_2 ont été mesurés, ce qui a permis de le positionner à l'intérieur du triangle et de donner des informations précieuses sur sa forme. Il est en effet possible d'associer à chaque couple (λ_1, λ_2) un ellipsoïde ayant les mêmes propriétés d'inertie que l'objet considéré. La connaissance des valeurs de λ_1 et λ_2 caractérise ainsi la forme de l'objet, en déterminant par exemple si elle est plus proche à celle d'une baguette plutôt qu'à celle d'un disque.

9. Boîte englobante normalisée (β_1, β_2) : en analogie aux moments d'inertie principaux adimensionnels, le concept de boîte englobante normalisée a été introduit. Chaque côté est défini comme $\beta_i = \frac{b_i}{b_x + b_y + b_z}$. En conséquence, seulement deux composantes sont indépendantes (par exemple β_1 et β_2). Comme pour les moments d'inertie principaux adimensionnels, la série d'inéquations suivantes limite les couples β_1 et β_2 à un triangle.

$$\beta_2 < \beta_1, \quad \beta_2 > 0.5(1 - \beta_1), \quad \beta_1 + \beta_2 < 1 \quad (\text{III.3})$$

10. Imbrication (Imb) : est une mesure de convexité de l'objet, selon une certaine direction. La définition en est tirée de [11]. L'imbrication d'un objet selon une direction x est définie à partir du nombre de points d'entrée (I_x) et du nombre de points de première entrée (FI_x). La figure III.7 illustre cette définition. Pour calculer FI_x , des lignes parallèles à la direction x sont tracées, de gauche à droite et les points où les lignes entrent dans l'objet une première fois sont comptées. Si l'objet présente des concavités, les lignes tracées peuvent sortir et entrer de nouveau dans l'objet. I_x est obtenu en comptant la totalité des points d'entrée. Evidemment, $I_x > FI_x$. L'imbrication selon la direction x est définie comme $Imb_x = 1 - FI_x/I_x$. Cet index prend la valeur 0 si $I_x = FI_x$, c'est-à-dire, si tous les points d'entrée sont des points de première entrée. C'est le cas d'un objet « convexe selon la direction x ». Au contraire, plus l'objet est concave, plus on trouvera des points de deuxième (ou troisième, etc.) entrée et plus l'index grandira. L'imbrication constitue donc une mesure de la non-convexité d'un objet. Les imbrications, pour un ensemble de 20 directions, ont été mesurées et leur moyenne retenue comme mesure finale. Ce paramètre moyen est proche du rapport entre les surfaces de l'enveloppe convexe et de l'objet.

Les paramètres peuvent se répartir en paramètres extensifs, c'est-à-dire proportionnels à l'extension de l'objet, et intensifs, qui ne dépendent pas de la taille. Les deux paramètres suivants ont été aussi introduits, dérivés à partir de r_{eq} et r_m et les substituant :

$$r_1 = \frac{r_{eq} + r_m}{2}, \quad r_2 = \frac{r_{eq} - r_m}{r_m} \quad (\text{III.4})$$

Les paramètres ont été divisés de la façon suivante :

- Paramètres extensifs (ou de taille) : V, S, r_1, B_1, B_2, B_3 .
- Paramètres intensifs (ou de forme) : $r_2, S/V, Sph, \lambda_1, \lambda_2, \beta_1, \beta_2, Imb$.

L'ensemble des mesures a été réalisé sur chaque objet de la bibliothèque 3D.

La finalité de l'étude était, comme dit précédemment, la classification des particules selon leur forme. Une première classe, celle des particules quasi sphériques, a pu être isolée

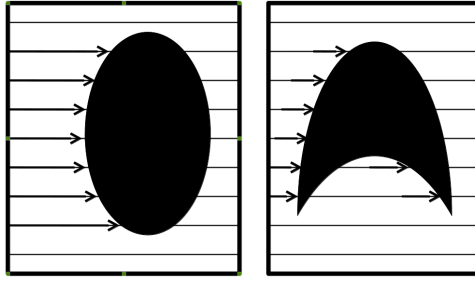


FIGURE III.7 – Calcul de l'imbrication, ici selon la direction horizontale. A gauche, imbrication nulle : l'objet mesuré est convexe et tous les point d'entrée sont des points de première entrée. A droite, imbrication positive : l'objet est non-convexe et certains points d'entrée ne sont pas des points de première entrée.

à ce stade avec un simple seuillage sur le paramètre de sphéricité. Le seuil a été fixé à 0,9. Tous les objets de sphéricité supérieure à 0,9 ont donc été rassemblés dans la classe « sphérique ». Il est, d'ailleurs, impossible d'effectuer les mesures avec précision pour les particules les plus petites, du fait qu'elles ne sont constituées que par quelques voxels. Il est préférable de les assimiler à des sphères et de les englober dans cette première classe, plutôt que « polluer » toutes les classes avec des petites particules peu représentatives de la forme de la classe. De plus, leur contribution volumique au sein de la poudre est limité à 0,3 %. Leur simulation n'est, donc, pas intéressante pour le but de l'étude. Un deuxième seuillage, cette fois, sur les trois tailles de la boîte englobante a permis d'isoler ce groupe de particules.

III.5.2 Comparaison avec la granulométrie laser (GL)

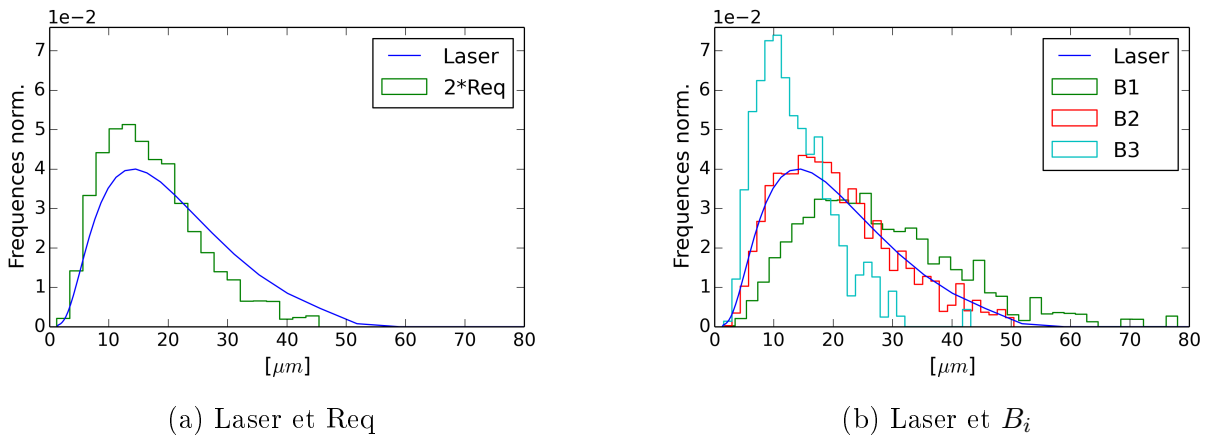


FIGURE III.8 – Comparaison des mesure morphologiques de taille avec le résultat de la granulométrie laser (GL) par voie sèche. (a) : GL et distribution du rayon de la sphère équivalente (Req); (b) : GL et distribution des trois côtés des boîtes englobantes le long des axes principaux d'inertie (B_1 , B_2 , B_3).

Avant de poursuivre l'étude, la technique de caractérisation par MTX a été comparée à des méthodes plus classiques, notamment la GL et l'observation au MEB. La confrontation plus pertinente est celle avec la GL. Les mesures morphologiques, obtenues de l'analyse des images MTX, Peuvent être quantitativement comparées aux résultats de la GL de la poudre de tantale, montrés au début du chapitre. Parmi les mesures effectuées sur les particules de la bibliothèque, quatre on été choisies pour effectuer cette comparaison : Req

(le rayon équivalent) et le trio B_1 , B_2 , B_3 (les côtés de la boîte englobante le long des axes principaux d'inertie). Comme expliqué dans le chapitre 2, la GL fait l'hypothèse que les particules sont sphériques et rend les résultats sous forme d'histogrammes des diamètres équivalents mesurés. Cela explique le choix du paramètre « 2-Req » pour la comparaison, donnée en figure III.8a. La distribution de 2-Req est légèrement décalée vers des tailles plus petites par rapport à la mesure par GL. On pourrait s'arrêter ici et conclure que probablement une légère agrégation de la poudre lors de la GL a produit cette différence.

Si la poudre était sphérique, les mesures Req, Rm, B_1 , B_2 , B_3 présenteraient toutes la même distribution. Dans le cas de poudre irrégulière, en revanche, l'analyse des mesures de B_1 , B_2 et B_3 apporte des éléments supplémentaires. La comparaison avec la GL est montrée en figure III.8b. B_1 et B_3 fournissent respectivement une limite supérieure et inférieure aux mesures globales de taille linéaire des particules. B_2 , en revanche, semble très bien représenter le résultat de la GL, au point de se demander si une relation mathématique entre la distribution de B_2 et celle mesurée par GL n'existe pas. Pour éclaircir ce point, il faudrait poursuivre l'étude, d'une part, en étudiant les détails du modèle de Mie et, d'autre part, en comparant les mesures par GL et par MTX de poudres de morphologies différentes.

Il est délicat de comparer différentes techniques granulométriques, du fait qu'elles reposent sur des phénomènes physiques différents. Cela dit, les méthodes d'observation directes, comme la MTX, apportent certainement une caractérisation plus riche. Les particules peuvent, en effet, être observées et mesurées individuellement. Une multitude de mesures peut s'effectuer, selon les besoins de l'utilisateur et les caractéristiques de la poudre. De plus, l'influence d'éventuelles anomalies peut être jugée (par exemple, la présence d'aggrégats). Les méthodes de mesure indirecte, comme la granulométrie laser, ont, en revanche, l'avantage d'être beaucoup plus rapides et économiques, au prix d'une caractérisation moins riche et moins précise. Dans le cas d'une poudre irrégulière, il a été montré que la distribution mesurée par GL ne s'identifiait pas obligatoirement avec celle des diamètres équivalents. Cette affirmation est limitée à notre cas et demande d'autres preuves expérimentales et théoriques pour être confirmée.

III.5.3 Corrélations entre mesures

Avant de passer à l'analyse en composantes principales, les possibles corrélations et les dépendances entre les mesures ont été étudiées, afin d'éliminer les paramètres qui portent la même information. Il faut remarquer, d'une part, que le rayon équivalent (Req, voir § III.5.1 pour la définition), est une fonction qui dépend uniquement du volume. Pour cette raison, il a été décidé de retenir Req plutôt que le volume dans le reste de l'analyse. De plus, les corrélations des mesures effectuées ont été étudiées. La figure III.9 montre les dispersions des données pour chaque couple de mesures, séparément pour la taille (à gauche) et pour la forme (à droite). Sur chaque élément de la diagonale, l'histogramme de la mesure correspondante est présenté. On note des corrélations importantes entre tous les paramètres de taille, ce qui est d'ailleurs raisonnable. En revanche, les données des paramètres de forme sont beaucoup plus dispersées. Des corrélations particulières entre ces mesures n'ont pas été mises en évidence.

III.5.4 Analyse en composantes principales

L'analyse en composantes principales (ACP dans la suite) est une méthode de l'analyse multivariée qui permet de trouver les directions dans l'espace des mesures le long desquelles les données expriment au mieux leur variance. Les axes ainsi trouvés sont ordon-

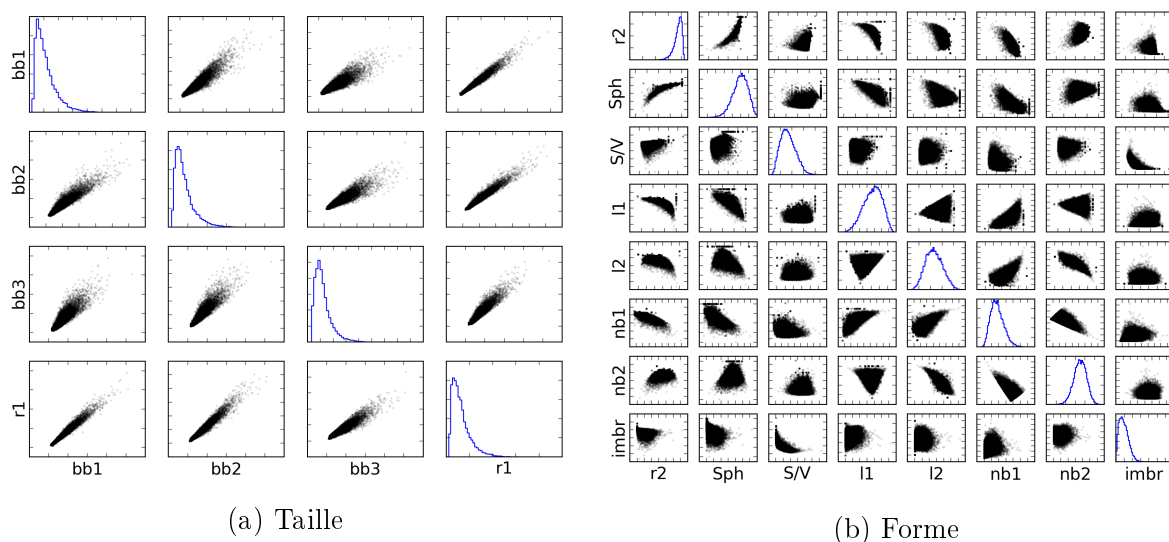


FIGURE III.9 – Histogrammes et diagrammes de corrélation, à gauche pour les paramètres de taille, à droite pour ceux de forme.

nés par importance (contribution à la variance totale) et prennent le nom de composantes principales. On peut ensuite ne pas tenir compte des composantes moins importantes et effectuer ainsi une réduction du nombre des composantes.

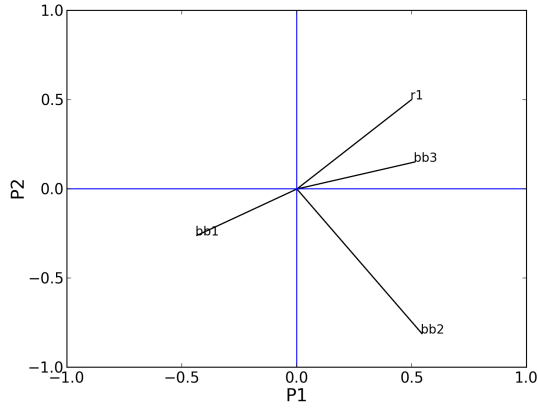
Pour la suite, les détails de l'ACP vont être présentés. La première étape est la standardisation des mesures, obtenue en appliquant la transformation $x \rightarrow (x - m)/s$, où m est la moyenne et s l'écart type. On peut, après cette transformation, construire la matrice des données standardisées de dimensions n (nombre d'objets) \times p (nombre de mesures). A partir de celle-ci, on calcule la matrice de covariance selon la définition $\Sigma_X = E((X - E(X))(X - E(X))^T)$, où $E()$ est l'espérance et X est le vecteur des p mesures standardisées. L'étape fondamentale de l'ACP consiste à trouver le système orthogonal qui diagonalise la matrice de covariance Σ_X . L'existence d'un tel système est assurée par le fait que Σ_X est symétrique. Les valeurs propres sont ensuite ordonnées selon leur grandeur. Les vecteurs propres correspondants sont appelés composantes principales. La diagonalisation n'est autre qu'une rotation dans l'espace des mesures standardisées. Les nouveaux axes - les composantes principales - sont des combinaisons linéaires des mesures standardisées. La valeur propre est proportionnelle au pourcentage de la variance totale exprimée, ce qui permet d'ordonner les composantes par importance.

Pour résumer, l'ACP permet de trouver les composantes le long desquelles les données expriment au mieux leur variance. Cette technique a été utilisée pour effectuer une réduction des dimensions de l'espace des paramètres de forme. Un certain nombre des composantes principales a été retenu, de façon à ce qu'elle couvrent au moins 90 % de la variance totale. Cette valeur est à la discrétion de l'utilisateur et peut varier en fonction du cas.

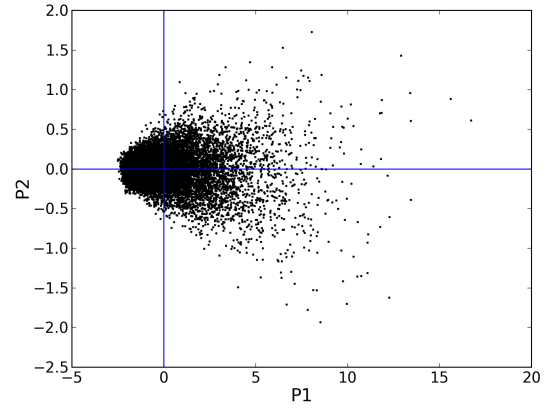
	B_1	B_2	B_3	r_1
P_1 (94,6%)	-0,42	0,52	0,55	0,5

TABLEAU III.1 – Résultats de l'ACP pour le paramètres de taille : coefficients de corrélation entre les paramètres de taille et la première composante principale. Le pourcentage entre parenthèses représente la fraction de la variance totale exprimée.

La méthode de l'ACP a été appliquée séparément aux paramètres de taille et de forme

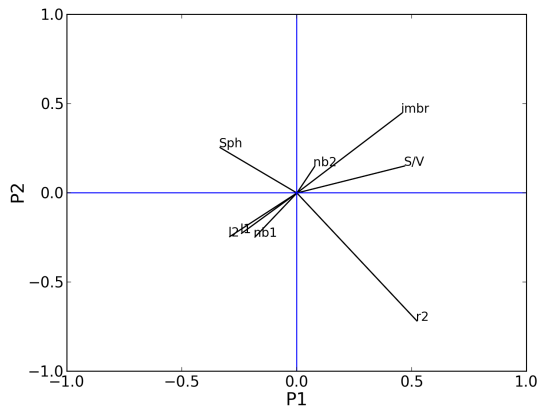


(a) Projections des mesures

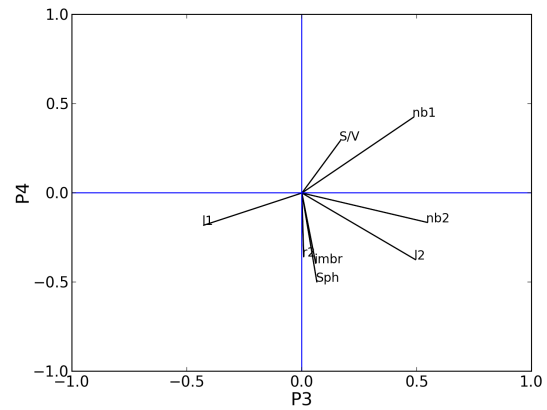


(b) Distribution des objets

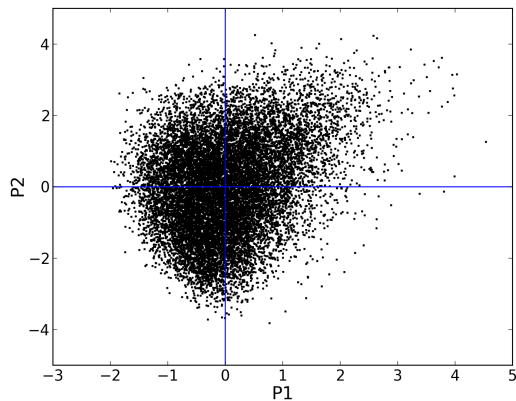
FIGURE III.10 – Résultats de l'ACP pour le paramètres de taille. A gauche, projection des mesures sur le plan des deux premières composantes principales (P_1 , P_2). A droite, dispersion des objets mesurés sur le même plan (P_1 , P_2).



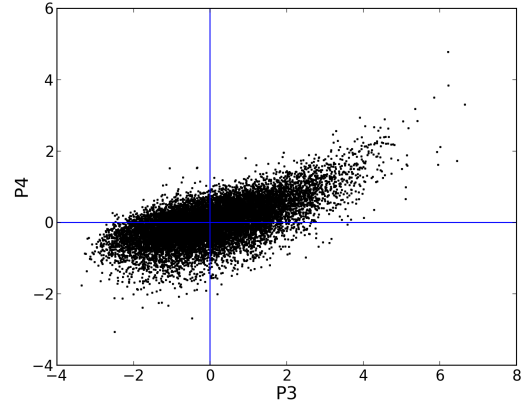
(a) Projections des mesures



(b) Projections des mesures



(c) Distribution des objets



(d) Distribution des objets

FIGURE III.11 – Résultats de l'ACP pour le paramètres de forme. En haut à gauche, projection des mesures sur le plan des deux premières composantes principales (P_1 , P_2), en haut à droite sur le plan (P_3 , P_4). En bas à gauche, dispersion des objets mesurés sur le plan (P_1 , P_2), à droite sur le plan (P_3 , P_4).

	r_2	Sph	S/V	λ_1	λ_2	β_1	β_2	Imb
P_1 (51,2%)	-0,59	-0,39	0,32	-0,18	-0,36	-0,17	0,09	0,45
P_2 (23,9 %)	0,62	0,31	0,23	-0,37	-0,26	-0,21	0,16	0,44
P_3 (15 %)	-0,21	0,15	-0,07	-0,43	0,48	0,48	0,49	0,20

TABLEAU III.2 – Résultats de l'ACP pour le paramètres de forme : coefficients de corrélation entre les paramètres de forme et les trois premières composantes principales. Les pourcentages entre parenthèses représentent la fraction de la variance totale exprimée.

(illustrés en figure III.9) sur l'ensemble des particules qui ne font pas partie de la classe sphérique.

Résultats de l'analyse des tailles.

Les pourcentages de la variance totale exprimés pour chaque composante principale sont 94,6 % pour P_1 , 3,4 % pour P_2 , 1,8 % pour P_3 et 0,2 % pour P_4 . Ce résultat met en évidence le fait que la composante P_1 est largement suffisante pour représenter la variabilité de la totalité des données. Il était d'ailleurs souhaitable de retrouver ce résultat, car il est logique que la taille puisse être décrite par un seul paramètre. La GL décrit également, de manière plus aisée, la taille des particules par un seul paramètre. Elle reste toutefois une analyse 2D et ne décrit pas au mieux la réalité. De plus, elle ne donne aucune information sur la forme des objets observés.

Le tableau III.1 montre les coefficients de corrélation entre les paramètres de taille et la première composante principale. La figure III.10 à gauche montre les projections des paramètres de taille sur le plan (P_1, P_2) des deux premières composantes principales. De plus, sur cette figure, à droite, la dispersion des données est présentée sur le même plan (P_1, P_2) . A chaque point correspond une particule de la bibliothèque. Les mêmes types de représentation des données sont utilisés en figure III.11 pour les paramètres de forme.

Résultats de l'analyse des formes.

Les pourcentages de la variance totale exprimés par chaque composante principale sont 51,2 % pour P_1 , 23,9 % pour P_2 , 15,0 % pour P_3 et 4,9 % pour P_4 . Les autres composantes principales expriment moins de 2,5 % chacune. A la différence des paramètres de taille, il a fallu retenir ici plusieurs composantes principales afin d'atteindre 90 % de la variance totale. Plus précisément, P_1 , P_2 et P_3 sont suffisantes pour exprimer ensemble 90,1 % de la variance totale. Ces résultats montrent donc que la description de forme, pour la poudre en considération, ne peut pas se faire dans un espace unidimensionnel, comme pour la taille, mais nécessite au moins trois paramètres indépendants.

La technique de l'ACP a permis de réduire remarquablement le nombre de paramètres à considérer, tout en minimisant la perte d'information. La classification de la bibliothèque, qui est l'objet de la prochaine section, a utilisée les trois composantes principales, issues des paramètres de forme. Les diagrammes en figure III.11 en bas montrent que les données sont distribuées de façon assez homogène à l'intérieur d'une région de l'espace (P_1, P_2, P_3) . Ils ne présentent pas, par eux-mêmes, une structure en classes séparées.

III.5.5 Partitionnement de données (« Cluster analysis »)

La figure III.11 montre que les données, dans l'espace des trois premières composantes principales, n'ont pas une organisation interne permettant de suggérer une division en classes bien séparées. Les particules semblent plutôt former un continuum dans l'espace

des formes. Pour cette raison, on s'attend à une classification artificielle imposée, qui ne présente pas une solution de continuité entre les classes.

Pour regrouper les objets en classes de forme, des techniques de partitionnement de données (en anglais « cluster analysis ») ont été utilisées. Sous ce nom sont regroupées plusieurs méthodes statistiques pour la classification, divisées en deux familles : classifications hiérarchiques et non-hiérarchiques. Une description détaillée des différentes méthodes classifiées sur cette appellation, voir [51]. Parmi les techniques disponibles, la méthode des K-means a été choisie. Elle consiste à diviser les objets dans K groupes, tout en minimisant une certaine fonction objectif, qui dans le cas présent est l'inertie (somme des carrés des distances avec le barycentre de chaque classe). L'algorithme a donc retenu la répartition des objets qui minimise cette fonction. Le seul paramètre qui dépend de l'utilisateur est le nombre de classes (K). Le manque d'une structure interne dans les données se traduit par une absence de guide dans ce choix.

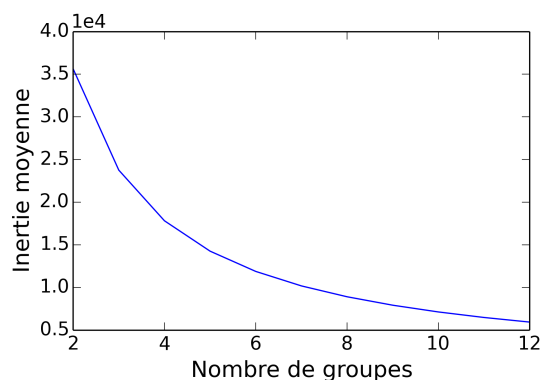


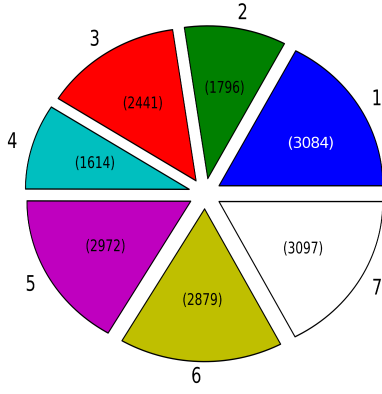
FIGURE III.12 – Variation de l'inertie moyenne d'un groupe pour différentes classifications, avec K (nombre de groupes) croissant.

Des valeurs de K entre 2 et 12 ont été explorées. La figure III.12 montre l'inertie moyenne d'un groupe pour des classements avec différents K. L'inertie moyenne est une fonction monotone du nombre des groupes, comme on pourrait le prévoir. Le fait qu'il n'existe pas de minimum, confirme l'absence de classification optimale. D'une part, plus K est grand, plus la classification est détaillée. D'autre part, plus les classes deviennent petites, plus le nombre d'objets proches des frontières entre les classes augmente. L'appartenance de ceux-ci à une classe plutôt qu'à une autre est donc incertaine. Finalement, K = 6 a été retenu comme meilleur compromis entre la simplicité et le détail du classement. Le nombre total de classes est, donc, 7 avec la première classe des particules, trop petites ou sphériques, exclues du partitionnement par K-means.

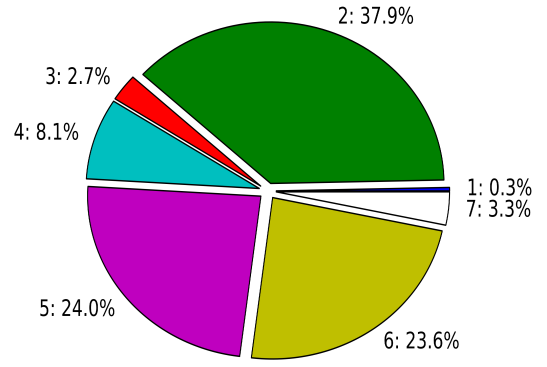
La figure III.13 montre les répartitions en nombre et en volume des particules. Si les classes sont à peu près composées d'un même nombre de particules, elles ne contribuent pas de la même manière au volume. Bien que la classification ait été faite seulement en utilisant les mesures de forme, une certaine corrélation émerge, donc, entre l'appartenance à une classe donnée et le volume. Dans l'analyse des classes, présentée dans la suite, cette corrélation est explicitée par l'histogramme de r_{eq} , lié à la répartition des volumes des particules.

III.5.6 Présentation du classement

les mesures pour l'ensemble des particules. Les classes 2, 5 et 6, totalisant environ 85 % du volume totale de la poudre, sont les plus représentées dans la bibliothèque.



(a) En nombre



(b) En volume

FIGURE III.13 – Répartition des particules de la bibliothèque en 7 classes de forme (à gauche, en nombre, à droite en volume). La classe 1 contient les particules minuscules et les sphériques.

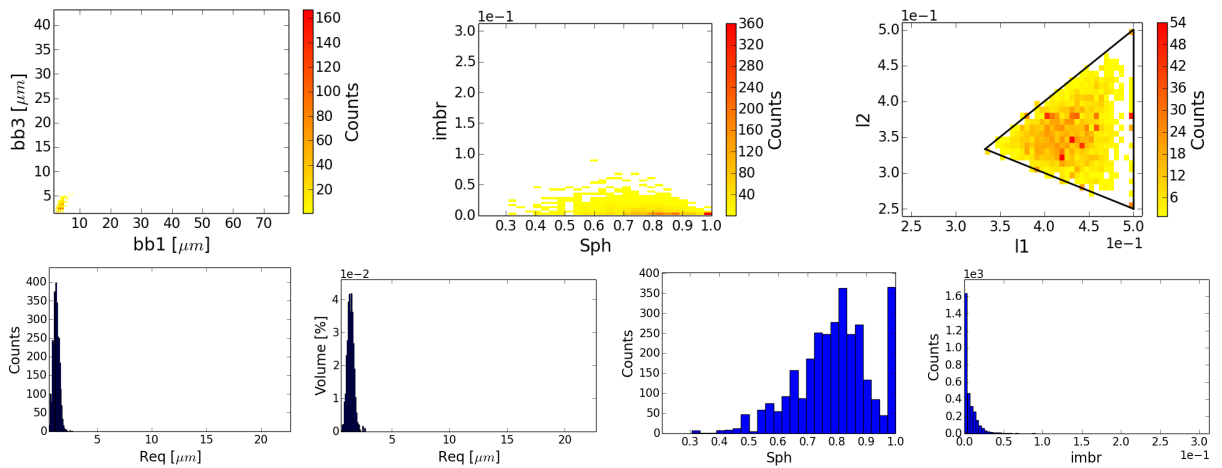
	B1	B2	B3	Req	Sph	λ_1	λ_2	Imb
M	11.24	8.32	5.99	3.39	0.71	0.43	0.36	0.04
d	7.39	5.27	3.37	2.20	0.11	0.03	0.04	0.03
MW	27.82	20.46	13.57	8.60	0.67	0.44	0.36	0.09
dW	13.32	9.83	6.48	4.17	0.08	0.02	0.04	0.03
Min	1.55	1.54	1.54	0.60	0.21	0.33	0.25	0.00
Max	78.01	50.44	43.17	22.70	1.00	0.50	0.50	0.31

TABLEAU III.3 – Sommaire des mesures morphologiques sur la totalité des particules. Seulement les 8 mesures les plus représentatives ont été choisies. M est la moyenne, d l'écart type, MW la moyenne pondérée sur le volume, dW l'écart type pondéré sur le volume.

Classe 1

Nombre de particules dans la classe : 3084

Volume de la classe : 0,3 %



Il s'agit de la classe composée par les particules exclues de l'ACP et de la K-means. On observe une concentration vers les petites tailles ($Req < 5 \mu m$) et vers des valeurs de

	B1	B2	B3	Req	Sph	λ_1	λ_2	Imb
M	3.96	3.40	2.76	1.23	0.80	0.43	0.35	0.01
d	0.75	0.72	0.70	0.27	0.13	0.03	0.04	0.01
MW	4.32	3.75	3.10	1.41	0.79	0.42	0.35	0.01
dW	0.71	0.72	0.74	0.28	0.11	0.03	0.03	0.01
Min	1.55	1.54	1.54	0.60	0.31	0.33	0.25	0.00
Max	7.82	6.81	5.81	2.71	1.00	0.50	0.50	0.09

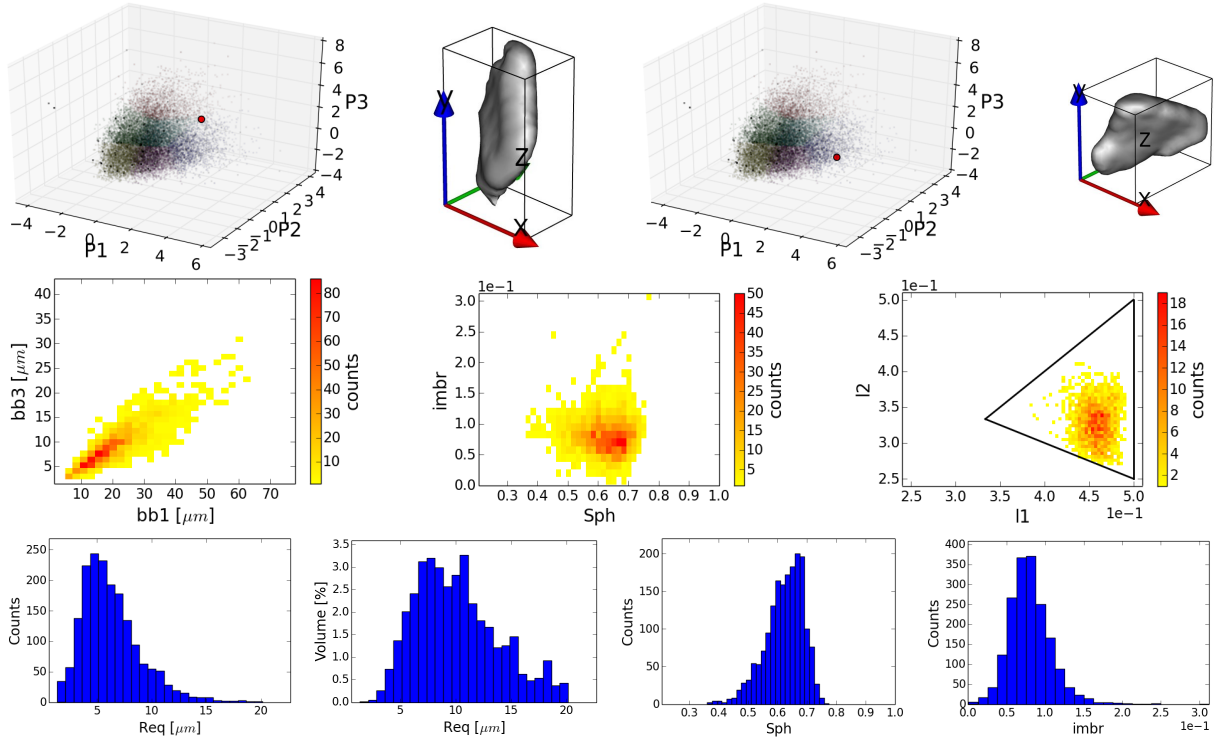
TABLEAU III.4 – Sommaire des mesures morphologiques pour la classe 1. Seulement les 8 mesures les plus représentatives ont été choisies. M est la moyenne, d l'écart type, MW la moyenne pondérée sur le volume, dW l'écart type pondéré sur le volume.

sphéricité élevées. C'est la seule classe à occuper la presque totalité du triangle de forme. Ces faits son explicables par l'origine de cette classe, obtenue par filtrage des données et non pas par l'application de la méthode des K-means. La classe regroupe les particules que l'on n'a pas besoin de simuler, soit parce que trop petites, soit parce que sphériques et donc qu'on peut simuler en 2D. Comme expliqué auparavant, le filtrage a été fait d'une part sur la sphéricité (les particules ayant sphéricité supérieure à 0,9 sont assimilables à des sphères) et d'autre part sur la taille (la dimension la plus grande étant inférieure à 4 μm). Cela explique donc les observations faites pour cette classe. L'histogramme de Req montre, entre autre, qu'il n'y a pas de particules sphériques de diamètre supérieur à 5 μm .

Classe 2

Nombre de particules dans la classe : 1796

Volume de la classe : 37,9 %



C'est la classe la plus représentée en volume : presque 38% du volume total (fig. III.13). On observe des grandes tailles, des basses sphéricités (entre 0,5 et 0,7 pour la majorité)

	B1	B2	B3	Req	Sph	λ_1	λ_2	Imb
M	20.61	16.78	9.22	6.28	0.62	0.46	0.33	0.08
d	8.80	6.74	4.02	2.70	0.06	0.01	0.03	0.03
MW	32.52	25.97	14.54	10.11	0.64	0.45	0.33	0.10
dW	11.76	9.08	5.51	3.75	0.06	0.02	0.03	0.03
Min	5.04	4.28	2.31	1.38	0.36	0.38	0.27	0.00
Max	63.72	50.44	31.29	20.14	0.77	0.49	0.41	0.31

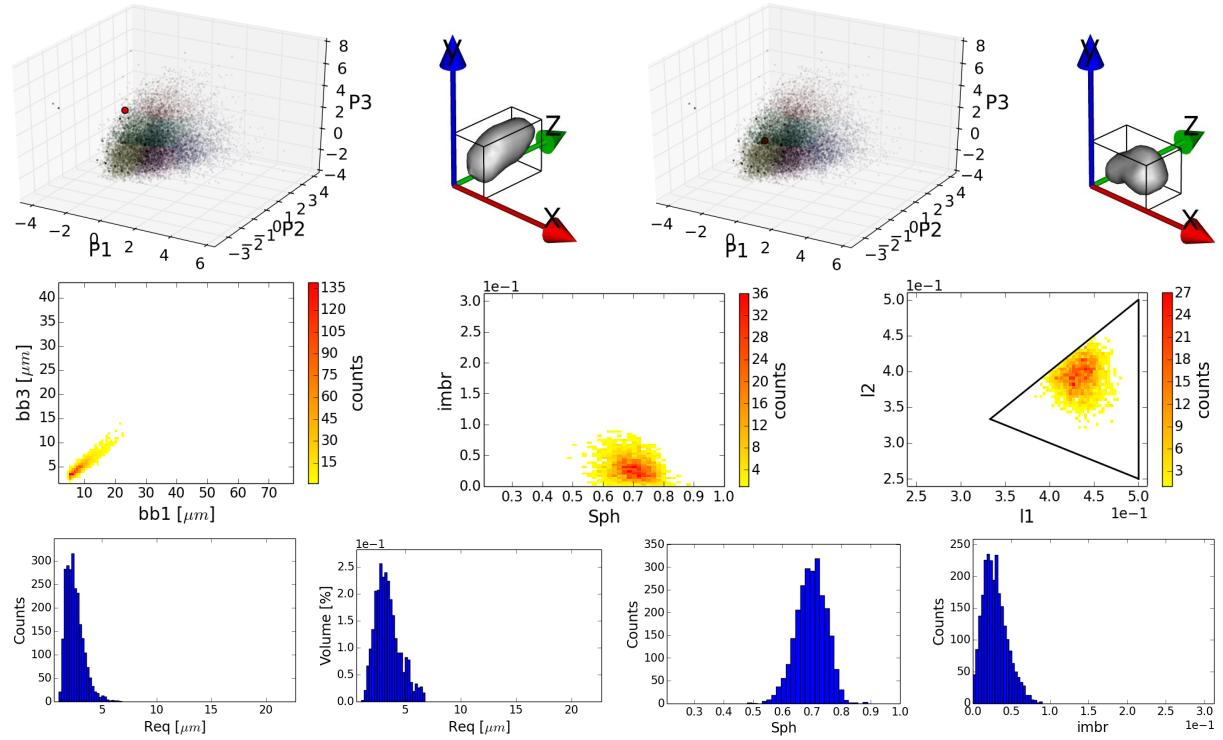
TABLEAU III.5 – Sommaire des mesures morphologiques pour la classe 2. Seulement les 8 mesures les plus représentatives ont été choisies. M est la moyenne, d l'écart type, MW la moyenne pondérée sur le volume, dW l'écart type pondéré sur le volume.

des particules) et un positionnement dans le triangle d'inertie tendant vers des formes du type disque.

Classe 3

Nombre de particules dans la classe : 2441

Volume de la classe : 2,7 %



Cette classe représente seulement le 2.7% du volume totale, bien qu'elle contient un nombre de particules comparable aux autres classes. La sphéricité est moyenne (entre 0,6 et 0,8 pour la majorité des particules). Le positionnement du nuage dans le triangle d'inertie situe ce groupe à moitié entre les sphères et les baguettes.

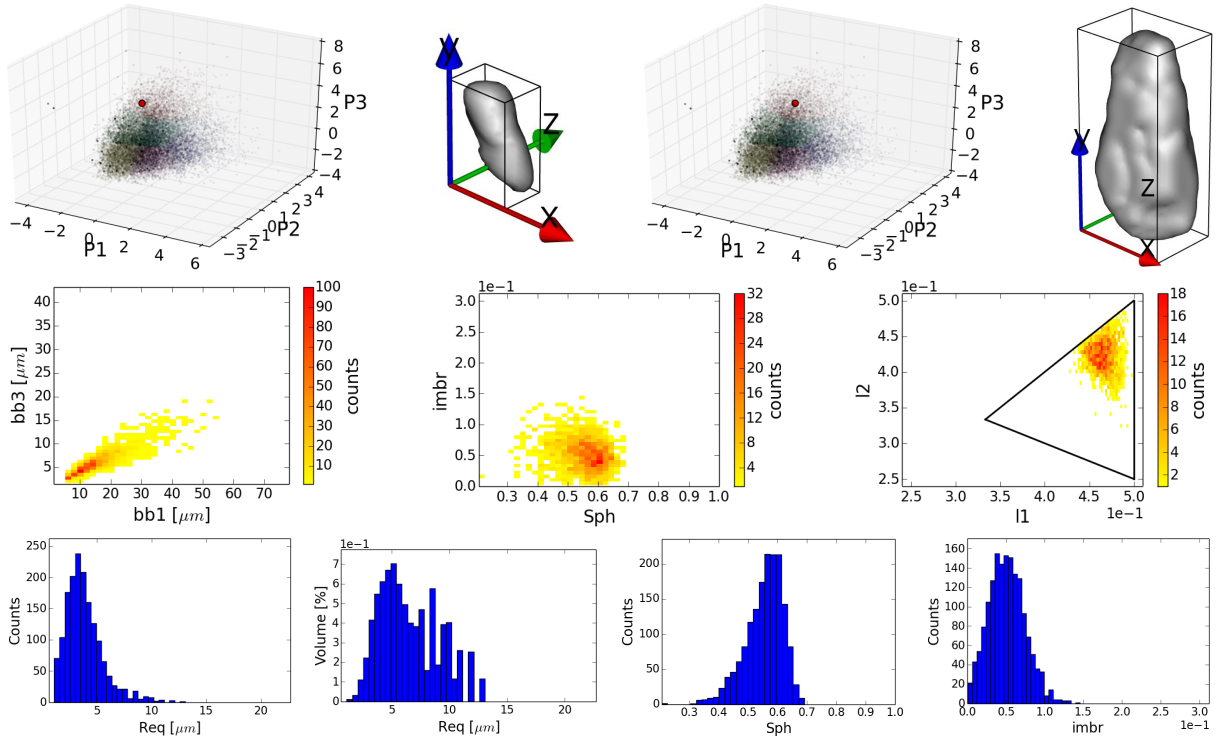
Classe 4

Nombre de particules dans la classe : 1614

Volume de la classe : 8,1 %

	B1	B2	B3	Req	Sph	λ_1	λ_2	Imb
M	8.73	5.65	4.80	2.51	0.70	0.43	0.39	0.03
d	2.77	1.58	1.55	0.82	0.05	0.01	0.02	0.02
MW	11.73	7.32	6.45	3.42	0.70	0.43	0.40	0.04
dW	3.75	2.06	2.13	1.12	0.04	0.01	0.02	0.02
Min	4.27	2.53	1.62	1.06	0.48	0.38	0.32	0.00
Max	22.80	13.81	14.04	6.79	0.89	0.48	0.45	0.09

TABLEAU III.6 – Sommaire des mesures morphologiques pour la classe 3. Seulement les 8 mesures les plus représentatives ont été choisies. M est la moyenne, d l'écart type, MW la moyenne pondérée sur le volume, dW l'écart type pondéré sur le volume.



	B1	B2	B3	Req	Sph	λ_1	λ_2	Imb
M	15.71	8.26	5.96	3.83	0.55	0.47	0.42	0.05
d	7.30	3.64	2.49	1.73	0.06	0.01	0.02	0.02
MW	26.95	13.66	9.53	6.52	0.55	0.47	0.42	0.08
dW	11.01	5.21	3.58	2.55	0.06	0.01	0.02	0.02
Min	5.26	2.35	1.60	1.09	0.21	0.43	0.32	0.00
Max	55.04	24.96	19.29	13.06	0.69	0.50	0.48	0.15

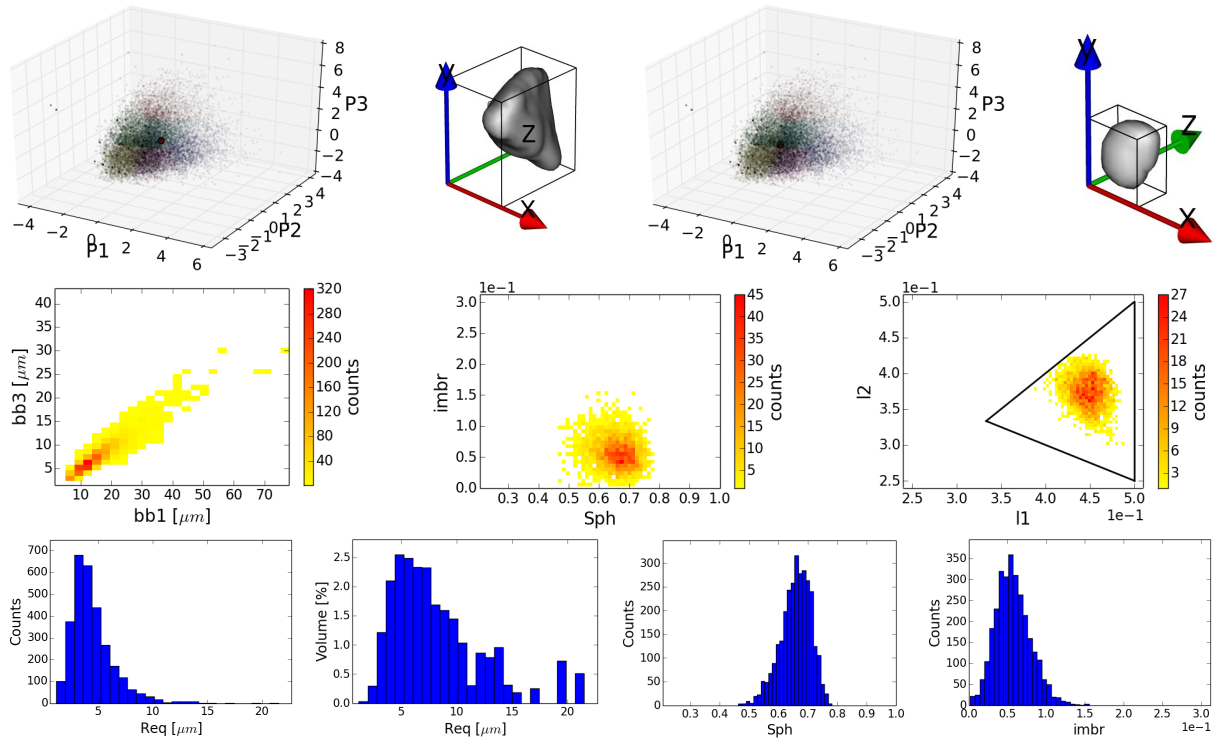
TABLEAU III.7 – Sommaire des mesures morphologiques pour la classe 4. Seulement les 8 mesures les plus représentatives ont été choisies. M est la moyenne, d l'écart type, MW la moyenne pondérée sur le volume, dW l'écart type pondéré sur le volume.

Pour cette classe, l'incidence en nombre et en volume sont comparables (les aires dans les deux camemberts en fig. III.13. La sphéricité est faible (entre 0,4 et 0,7 pour la majorité des particules). Le nuage occupe l'angle supérieur du triangle d'inertie, caractérisant donc la classe avec des formes allongées, à baguette.

Classe 5

Nombre de particules dans la classe : 2972

Volume de la classe : 24,0 %



	B1	B2	B3	Req	Sph	λ_1	λ_2	Imb
M	15.35	10.40	7.34	4.45	0.66	0.45	0.37	0.06
d	6.89	4.03	3.25	1.99	0.05	0.01	0.02	0.02
MW	28.40	17.91	13.17	8.27	0.66	0.44	0.38	0.08
dW	14.86	8.31	6.25	4.21	0.05	0.01	0.02	0.02
Min	5.03	3.18	2.31	1.18	0.46	0.39	0.30	0.00
Max	78.01	45.11	30.54	21.50	0.78	0.49	0.43	0.16

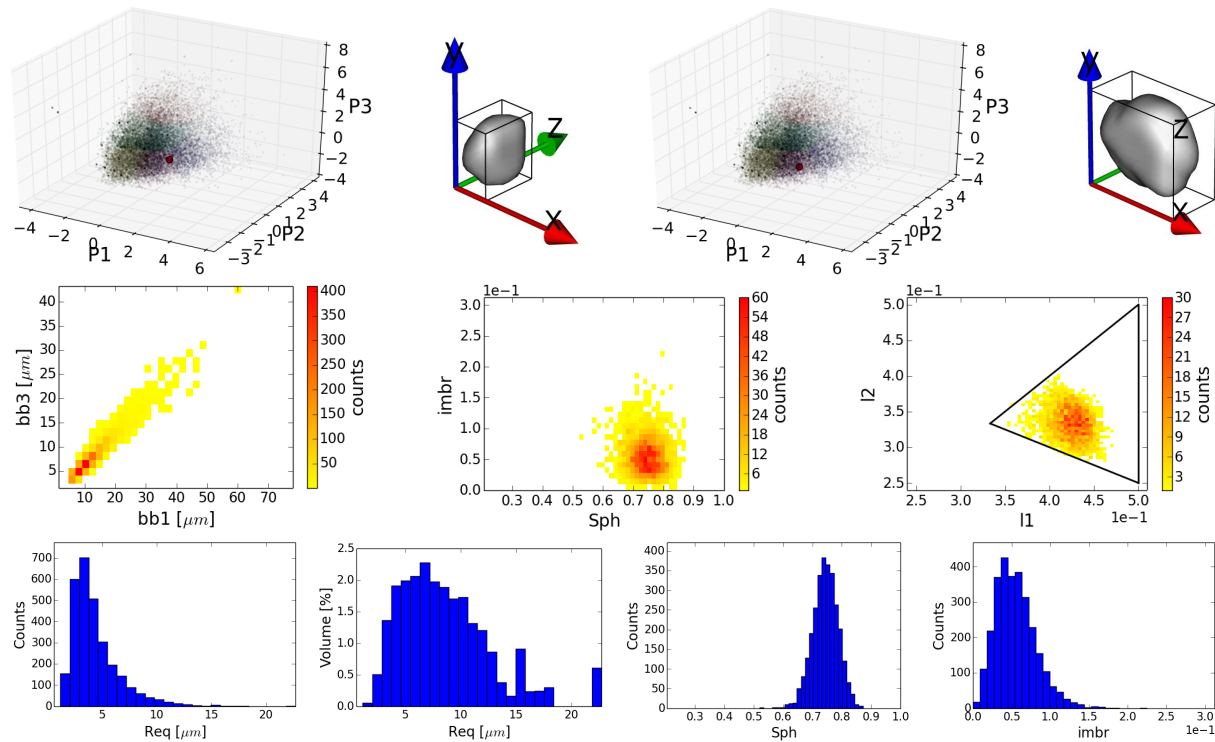
TABLEAU III.8 – Sommaire des mesures morphologiques pour la classe 5. Seulement les 8 mesures les plus représentatives ont été choisies. M est la moyenne, d l'écart type, MW la moyenne pondérée sur le volume, dW l'écart type pondéré sur le volume.

Cette classe est légèrement plus représentée en volume qu'en nombre, indiquant des particules de taille un peu plus grande que la moyenne globale. La sphéricité est moyenne (entre 0,6 et 0,7 pour la majorité des particules) et le nuage est situé dans la zone centrale du triangle d'inertie, caractérisant donc la classe avec des formes hybrides, soit allongées, soit plates.

Classe 6

Nombre de particules dans la classe : 2879

Volume de la classe : 23,6 %



	B1	B2	B3	Req	Sph	λ_1	λ_2	Imb
M	12.70	10.80	7.91	4.31	0.74	0.42	0.33	0.06
d	6.05	4.71	3.96	2.15	0.04	0.02	0.02	0.03
MW	24.60	20.02	15.63	8.63	0.76	0.41	0.34	0.08
dW	11.51	8.94	7.67	4.20	0.04	0.02	0.02	0.03
Min	4.72	4.11	2.31	1.18	0.52	0.35	0.28	0.00
Max	60.99	48.75	43.17	22.70	0.87	0.47	0.40	0.22

TABLEAU III.9 – Sommaire des mesures morphologiques pour la classe 6. Seulement les 8 mesures les plus représentatives ont été choisies. M est la moyenne, d l'écart type, MW la moyenne pondérée sur le volume, dW l'écart type pondéré sur le volume.

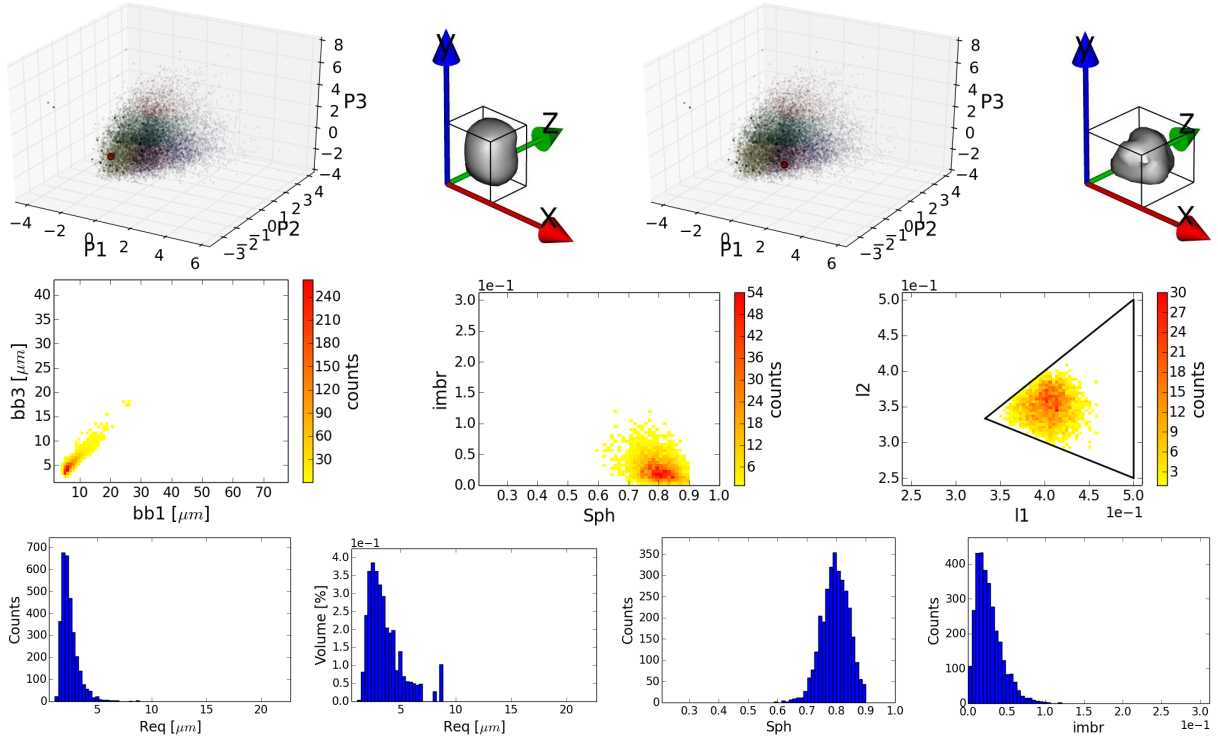
Cette classe est nettement plus représentée en volume qu'en nombre, indiquant des particules plutôt grandes par rapport à la moyenne globale. La sphéricité est assez élevée (entre 0,7 et 0,8 pour la majorité des particules) et le nuage est situé dans la zone du triangle d'inertie comprise entre les sphères et les disques.

Classe 7

Nombre de particules dans la classe : 3079

Volume de la classe : 3,3 %

Cette classe est nettement moins représentée en volume qu'en nombre, indiquant des particules plutôt petites par rapport à la moyenne globale. La sphéricité est très élevée (entre 0,7 et 0,9 pour la majorité des particules). La position du nuage dans le triangle d'inertie, proche du nuage de la classe 6 et légèrement déplacée vers les sphères, témoigne



	B1	B2	B3	Req	Sph	λ_1	λ_2	Imb
M	7.40	6.12	5.22	2.46	0.80	0.40	0.35	0.03
d	2.26	1.66	1.64	0.80	0.05	0.02	0.02	0.02
MW	10.54	8.35	7.45	3.60	0.80	0.40	0.36	0.04
dW	4.55	3.15	3.20	1.57	0.04	0.02	0.02	0.02
Min	3.85	2.79	2.31	1.12	0.59	0.35	0.29	0.00
Max	26.53	19.16	18.29	8.84	0.90	0.46	0.41	0.12

TABLEAU III.10 – Sommaire des mesures morphologiques pour la classe 7. Seulement les 8 mesures les plus représentatives ont été choisies. M est la moyenne, d l'écart type, MW la moyenne pondérée sur le volume, dW l'écart type pondéré sur le volume.

la tendance à la sphéricité. Un certain écart de la forme sphérique est assuré par la méthode de classification : les particules les plus sphériques ($Sph > 0,9$) ont été filtrées et regroupées dans la classe 1.

III.6 Conclusions

Un procédé innovant de caractérisation morphologique de la poudre en 3D a été mis en place. Pour l'observation, la MTX a été utilisée. Le traitement des images résultantes a permis d'isoler les particules individuelles. Leur ensemble constitue une bibliothèque 3D d'environ 18000 particules, qui pourront être utilisées dans les simulations d'impact EF (voir le chapitre IV).

La taille et la forme ont été caractérisées quantitativement, à travers 14 mesures morphologiques. La richesse des informations obtenues va bien au delà des possibilités offertes par des techniques d'observation plus classiques comme, par exemple, la GL ou l'observation au MEB.

Un premier groupe de particules, formé par les plus petites (aux limites de la résolution des images MTX) et les sphériques, a été isolée avec un filtrage des données sur la taille

de la boîte englobante et la sphéricité. Les particules de ce groupe ont été exclues de l'analyse suivante, mais ont été récupérées lors de la classification finale.

L'ACP a été utilisée, ensuite, pour la réduction dimensionnelle de l'espace des mesures. Cela a permis de simplifier l'ensemble des données, tout en minimisant la perte d'information. De plus, l'emploi de deux ACP distinctes, respectivement restreintes aux paramètres de taille et de forme, a conduit à la définition de deux groupes de descripteurs séparés (les composantes principales des deux analyses). Un seul paramètre a résulté être suffisant pour représenter la taille des particules. Pour la forme, en revanche, trois paramètres ont dû être retenus.

Finalement, la méthode de partitionnement des données dite « K-means » a été utilisée pour la répartition des particules en classes de forme. La technique a été appliquée aux trois premières composantes principales, résultantes de l'ACP de forme. Un nombre de 6 classes (7 si l'on ajoute le groupe des particules précédemment isolées) a été retenu comme meilleur compromis entre simplicité et précision du classement.

La classification constitue un aide pour un échantillonnage des particules efficace et représentatif lors des simulations EF.

Chapitre IV

Simulations par éléments finis

IV.1 Introduction

La caractérisation en 3D de la poudre a conduit à la création d'une bibliothèque d'environ 18000 particules, en 3D, qui ont été classées en fonction de leur forme. L'étape suivante vers la modélisation du procédé est d'étudier le comportement des différents types de particules à l'impact. La mise en place et les résultats de la modélisation d'impact en éléments finis (EF dans la suite) constituent le sujet du chapitre présent.

Pour simplicité, les simulations ont été développées d'abord en 2D. Ensuite, le passage au 3D est nécessaire pour utiliser les particules réelles, en provenance de la bibliothèque du chapitre précédent.

L'étude se limite à la simulation d'impact de particules individuelles, à l'exception de la partie sur l'écrouissage, où des impacts multiples sont considérés.

Le but de cette partie est, donc, la mise en place des calculs numériques pour l'estimation des champs de déformation produits par les impacts. La modélisation d'empilement, développée dans le chapitre V, utilise ces résultats. L'intérêt de la simulation EF est, en effet, de pouvoir fonder la modélisation d'empilement sur des bases physiques. Cela distingue l'approche de cette thèse des études déjà menées sur l'empilement (voir le chapitre 1), qui font appel à des modèles de déformation totalement phénoménologiques.

L'utilisation de deux substrats, en cuivre et en tantale, pour les impacts tient compte de l'existence de deux typologies de particules écrasées (« splats » dans la suite). Le premier type est représentatif des particules de la première couche du dépôt. Le deuxième est une approche de l'impact d'une particule sur une couche de tantale constituée par la poudre déjà déposée. Ce dernier type représente la majorité des impacts lors de la formation du dépôt.

Le travail de Serge Guetta (thèse MINES ParisTech 2010 sur le Cold Spray [52]) a servi de point de départ à l'étude par éléments finis. Sa recherche a porté sur la simulation en 2D de l'impact de particules sphériques, principalement de cuivre et d'aluminium.

IV.2 Phénoménologie des impacts

Les impacts des particules en cold spray sont caractérisés par de basses températures et de hautes vitesses, variables en fonction des paramètres de projection, de la granulométrie et de la forme de la poudre. Les particules arrivent sur le substrat à l'état solide et à grande vitesse, ce qui produit des grandes déformations et des grandes vitesses de déformation. La déformation intéresse, à la fois, la particule et le substrat, en proportion variable selon leurs duretés respectives. En particulier, elle se rapporte principalement à la particule

pour des impacts « mou sur dur ». Au contraire, pour des impacts « dur sur mou » elle affecte surtout le substrat. Il faut remarquer que tous les cas intermédiaires existent.

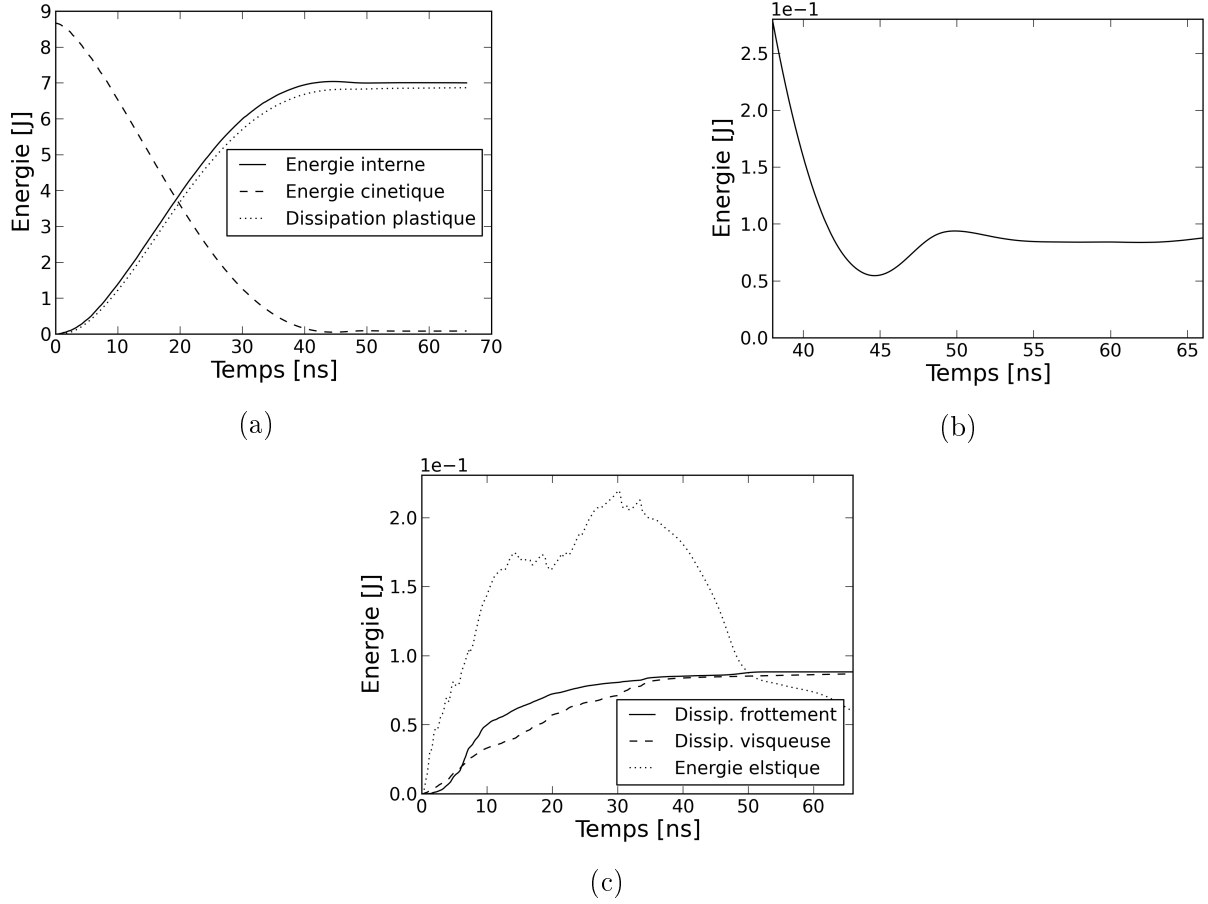


FIGURE IV.1 – Evolution des différentes énergies au cours de l’impact à 500 ms^{-1} d’une sphère de tantale de $20 \text{ }\mu\text{m}$ de rayon sur un substrat du même matériau. (a) : énergies cinétique et interne et dissipation plastique. (b) : détail de la région du minimum d’énergie cinétique. (c) : énergie élastique, dissipations visqueuse et par frottement.

Quelques résultats relatifs aux énergies, issus des simulations présentées en détails plus loin, sont anticipés afin d’illustrer la phénoménologie des impacts. La figure IV.1 montre l’évolution des différentes énergies au cours de l’impact d’une sphère de tantale sur un substrat du même matériau. La particule a un rayon de $20 \text{ }\mu\text{m}$ et une vitesse de 500 ms^{-1} . L’énergie cinétique de la particule en vol s’est transformée en chaleur par dissipation plastique (Fig. IV.1a), dissipation visqueuse et par frottement. Ces deux dernières ont contribué, pour à peu près 1 % chacune, à la dissipation totale qui est dominée par la plasticité. Une partie de l’énergie cinétique est convertie en énergie élastique (fig. IV.1c). La remontée de la courbe en fig. IV.1b est due au rebond : une partie de l’énergie élastique de compression a été re-transformée en énergie cinétique. En effet, l’adhésion a été négligée pour ne pas ajouter des paramètres inconnus au modèle et pour ne pas rentrer dans des problèmes liés à ce sujet, secondaires dans cette thèse. Une partie de l’énergie élastique est conservée dans le système sous forme d’ondes, créées à l’impact et réfléchies aux interfaces. La figure IV.1c montre également que l’énergie élastique est presque négligeable dans un bilan total de l’énergie, car elle représente au maximum seulement 3 % de l’énergie cinétique initiale.

IV.3 Physique du modèle

Les différentes parties du modèle d'impact sont expliquées dans la suite. Les phénomènes physiques qui interviennent au cours de la projection et leur présence dans le modèle numérique sont ainsi étudiés.

IV.3.1 Couplage thermomécanique

Certaines études, qui portent sur la simulation d'impact par éléments finis, négligent la conduction de la chaleur et se contentent de l'hypothèse d'adiabaticité (voir par exemple [53] ou [54]), justifiée selon les auteurs par la faible durée de l'impact par rapport aux durées de diffusion thermique. En revanche, il sera montré que la conduction de la chaleur est un phénomène à considérer dans les simulations d'impact car son temps caractéristique est proche de la durée de l'impact. Autrement dit, le temps pour la conduction de la chaleur et pour la déformation à l'impact sont du même ordre de grandeur. Pour le montrer, la diffusion de la chaleur est, dans un premier temps, étudiée analytiquement et des solutions approchées sont utilisées pour estimer le temps caractéristique du phénomène.

La loi de diffusion de la chaleur s'écrit :

$$\frac{\partial T}{\partial t} - \alpha \Delta T = S(x) \quad (\text{IV.1})$$

où T est la température, $S(x)$ la source de chaleur, $\alpha = \frac{\sigma}{\rho c_p}$ le coefficient de diffusion thermique, σ la conductibilité thermique, ρ la densité et c_p la capacité thermique. La méthode de la fonction de Green peut être utilisée pour la résolution de cette équation différentielle. Le fait que l'opérateur $L = \partial_t - \alpha \Delta$, associé à l'éq. IV.1, est linéaire assure la validité de la méthode. La fonction de Green pour ce problème existe et est fonction des seules normes $r = |\vec{x}|$ et $r' = |\vec{x}'|$ à cause de la symétrie sphérique de l'opérateur L :

$$G(x_i, t; x'_i, t') = \theta(t - t') (4\pi\alpha(t - t'))^{-3/2} \exp \left[-\frac{(r - r')^2}{4\alpha(t - t')} \right] \quad (\text{IV.2})$$

On peut alors l'utiliser pour la résolution du problème à la valeur initiale suivante :

$$\begin{cases} \frac{\partial T}{\partial t}(x_i, t) - \alpha \Delta T(x_i, t) = 0 \\ T(x_i, 0) = f(x_i) \end{cases}$$

La solution est donnée, pour $t > 0$, par l'intégrale suivante :

$$\begin{aligned} T(x_i, t) &= \int_V G(x_i, t; x'_i, 0) f(x'_i) d^3 x'_i \\ &= (4\pi\alpha t)^{-3/2} \int_V \exp \left[-\frac{(r - r')^2}{4\alpha t} \right] f(x'_i) d^3 x'_i \end{aligned} \quad (\text{IV.3})$$

Soit alors une distribution initiale de températures comme dans l'éq. IV.4 suivante, dans un milieu isotrope et homogène :

$$T(r, 0) = f(r) = \begin{cases} T_0 & \text{pour } r \leq R \\ 0 & \text{pour } r > R \end{cases} \quad (\text{IV.4})$$

La combinaison des équations IV.4 et IV.3 donne, enfin, la solution suivante :

$$\begin{aligned} T(x_i, t) &= \int_V G(x_i, t; x'_i, 0) f(r) d^3 x'_i = \\ &= T_0 (4\pi\alpha t)^{-3/2} \int_D \exp \left[-\frac{(r - r')^2}{4\alpha t} \right] d^3 x'_i \end{aligned} \quad (\text{IV.5})$$

où $D : \{\vec{x} \in \mathbb{R}^3 \mid |x| \leq R\}$. L'évolution temporelle de la température au centre de la sphère chaude peut donc s'écrire :

$$\begin{aligned} T(0, t) &= T_0 (4\pi\alpha t)^{-3/2} \int_0^R \exp\left(-\frac{r'^2}{4\alpha t}\right) r'^2 dr' \\ &= T_0 \left[2\operatorname{erf}\left(\frac{R}{2\sqrt{\alpha t}}\right) - \frac{2R}{\sqrt{\pi\alpha t}} \exp\left(-\frac{R^2}{4\alpha t}\right) \right] \end{aligned} \quad (\text{IV.6})$$

Le temps nécessaire pour que cette température se réduise de x % peut être calculé avec l'eq. IV.6. Les résultats sont présentés en fig. IV.2 et ils peuvent être interprétés de la façon suivante. Il faut d'abord considérer que l'intervalle temporel typiquement couvert par une simulation d'impact est de l'ordre de 10^{-7} ou 10^{-8} s, en fonction de la taille de la particule. Des premiers instants du calcul, la déformation plastique, localisée dans certains éléments du maillage, entraîne un réchauffement des mêmes éléments. Une différence de température s'installe, alors, entre éléments voisins.

La figure IV.2 permet de répondre à la question suivante : combien de temps est nécessaire pour que la diffusion de la chaleur produise une variation du x % de la température dans la région réchauffée ? Tout dépend de l'extension de cette région et du pourcentage x . Admettons, par exemple, que la zone réchauffée ait la taille d'une sphère de $1 \mu\text{m}$ de rayon et que la température ici soit plus élevée de ΔT par rapport aux alentours. La figure IV.2b affirme que, dans le cas du tantale, pour observer une diminution de 50 % de ΔT au centre de la zone réchauffée, un temps inférieur à 10^{-8} s est suffisant. Pour le cuivre, ce temps baisse à peu près à $2 \cdot 10^{-9}$ s. Ces valeurs sont inférieures à la durée d'une simulation d'impact : durant le calcul, la diffusion de la chaleur n'est pas un phénomène négligeable.

Cette analyse conclue donc que l'hypothèse d'adiabaticité n'est pas justifiée dans les impacts en cold spray, car la diffusion de la chaleur a des temps caractéristiques comparables à la durée des simulations d'impact.

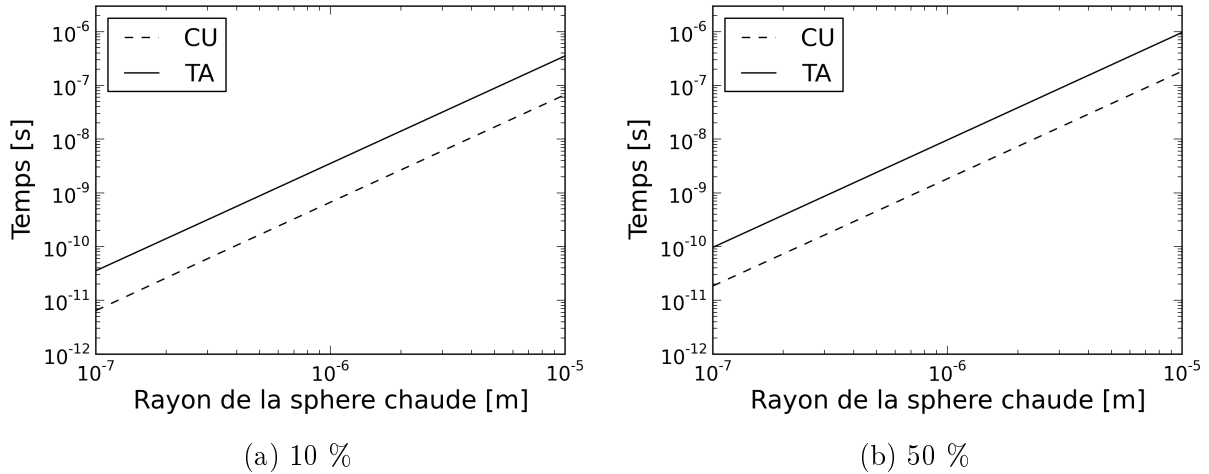


FIGURE IV.2 – Temps caractéristique de la diffusion de la chaleur pour une sphère chaude dans un milieu homogène. A gauche, temps nécessaire pour une diminution du 10 % de la température au centre de la sphère chaude. A droite, même représentation pour une diminution du 50 %.

IV.3.2 Elasticité et onde de choc

L'onde de choc est caractérisée par un changement soudain de la contrainte, de la densité et de la vitesse des particules matérielles. Les équations de conservation de la

masse, de l'impulsion et de l'énergie prennent donc la forme suivante :

$$\begin{aligned}
\text{Conservation de la masse} & : \rho_0 U = \rho(U - u) \\
\text{Conservation de l'impulsion} & : \sigma = \sigma_0 - \rho_0 U u \\
\text{Conservation de l'énergie} & : \rho_0(E - E_0) = (\sigma + \sigma_0)(1 - \rho_0/\rho)/2
\end{aligned} \tag{IV.7}$$

où ρ_0 et ρ représentent respectivement la densité initiale et actuelle, U est la vitesse de l'onde de choc, u la vitesse de la particule matérielle, σ et σ_0 la contrainte mécanique totale dans la direction de propagation, respectivement avant et après le choc, E_0 et E l'énergie interne avant et après le choc. La courbe de Hugoniot-Rankine, appelée aussi adiabatique de choc ou tout simplement Hugoniot, décrit l'ensemble des états que le matériau peut atteindre après une transition de type onde de choc. Selon [55], pour une grande partie des matériaux à l'état solide dans des compressions modérées ($< \sim 100$ GPa), la courbe de Hugoniot-Rankine peut être décrite par la relation linéaire suivante, qui lie la vitesse de la particule matérielle (u) et celle de l'onde de choc (U) :

$$U = c_0 + su \tag{IV.8}$$

où c_0 est la vitesse du son dans le matériau à son état initial et s est un paramètre non dimensionnel.

Une équation d'état est généralement une relation qui lie une variable thermodynamique à deux autres. Souvent, dans le domaine de la propagation des ondes de choc, la réponse du matériau est présumée adiabatique, ce qui implique que l'équation d'état soit une relation entre la pression, la densité et l'énergie interne et décrive les différents états du matériau. Cette hypothèse intéresse seulement la réponse élastique des matériaux et la propagation des ondes de choc. Elle ne concerne pas la conduction de la chaleur dans le modèle et, pourtant, n'est pas en contradiction avec la non adiabaticité du couplage thermomécanique précédemment discutée (cf. IV.3.1).

Pour les matériaux solides soumis à des conditions de choc, l'équation d'état de Mie-Grüneisen est couramment utilisée dans sa forme simplifiée, dite d'Hugoniot ou P-V-E (voir par exemple [55]) :

$$p - p_H = \Gamma \rho(E - E_H) \tag{IV.9}$$

avec $\Gamma = \frac{\Gamma_0 \rho_0}{\rho}$, $\eta = 1 - \frac{\rho_0}{\rho}$, $p_H = \frac{\rho_0 c_0^2 \eta}{(1-s\eta)^2}$ et $E_H = \frac{p_H \eta}{2 \rho_0}$ (l'indice H est pour Hugoniot). Les paramètres du matériau sont Γ_0 , c_0 et s . Les deux derniers définissent la relation linéaire entre la vitesse du choc et celle de la particule, comme dans l'équation IV.8.

IV.3.3 Visco-plasticité (« Johnson-Cook »)

Parmi les modèles de plasticité disponibles pour le tantale proposés en bibliographie ([33]), celui de Johnson-Cook (JC dans la suite) [34] a été choisi, dans sa version isotrope. Cette formulation empirique est une des plus simples et des plus utilisées pour la simulation d'impact en cold spray. La limite d'élasticité prend la forme suivante :

$$\sigma_{JC} = (A + B\epsilon^n) \left(1 + C \ln \frac{\dot{\epsilon}}{\epsilon_0}\right) \left[1 - \left(\frac{T - T_0}{T_{melt} - T_0}\right)^m\right] \tag{IV.10}$$

où ϵ est la déformation plastique équivalente, $\dot{\epsilon}$ sa dérivée temporelle, ϵ_0 est une vitesse de déformation de référence, T_{melt} est la température de fusion et T_0 une température de référence. A , B , C et m sont des paramètres du matériau. Les valeurs des ces derniers sont données et étudiées dans la partie IV.3.5.

Les trois blocs dans l'équation représentent les trois phénomènes suivants : l'écroutissage, l'écroutissage dynamique (plus la vitesse de déformation est élevée, plus le matériau écroute) et l'adoucissement thermique (plus la température est élevée, plus le matériau se déforme facilement).

Deux problèmes sont liés à l'utilisation de ce modèle : d'une part, les limites expérimentales des vitesses de déformation (cf. IV.3.5) sont bien inférieures des valeurs rencontrées en simulation. D'autre part, la formulation même du modèle de JC est critiquable : les auteurs de la référence [33], source des paramètres JC pour le tantale, affirment explicitement que la formule empirique IV.10 peut s'écarter notablement, dans le cas de grandes déformations, des données expérimentales.

IV.3.4 Frottement

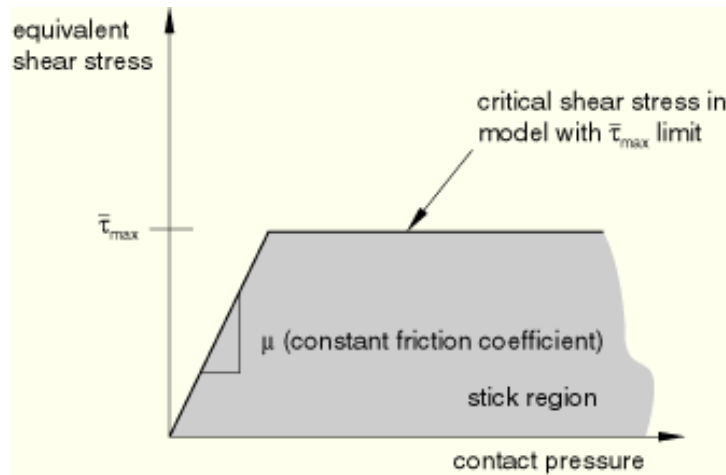


FIGURE IV.3 – Modèle de Coulomb modifié : contrainte de cisaillement maximale τ_{\max} en fonction de la pression de contact, d'après [56].

Pour décrire le frottement à l'interface particule-substrat, un modèle de Coulomb modifié a été utilisé. La contrainte de cisaillement maximale (τ_{\max}) qui peut être transmise à travers l'interface augmente de façon linéaire avec la pression de contact, jusqu'à atteindre une valeur qui ne peut être dépassée ($\bar{\tau}_{\max}$). On appelle ce dernier « cisaillement critique ». La constante de proportionnalité de la relation linéaire est le coefficient de frottement. La figure IV.3 montre la contrainte de cisaillement maximale (τ_{\max}) en fonction de la pression au contact.

Le choix du modèle, très simple, s'explique par une manque de connaissance des phénomènes intéressés par le frottement dynamique. De plus, les deux paramètres du modèle de Coulomb modifié, notamment le coefficient de frottement et le cisaillement critique, ne sont pas mesurables dans les conditions présentes, extrêmement dynamiques. Le premier paramètre dépend des deux matériaux en contact et de leur état de surface (micro et nano aspérités).

Des études précédentes (voir par exemple [57]) ont montré que les résultats des simulations avaient une très faible sensibilité par rapport aux variations du coefficient de frottement. Celui-ci a été fixé, donc, à la valeur de 0,3. Une étude plus approfondie, présentée en partie IV.5.3, a été menée sur le cisaillement limite.

Paramètre	Symbole	Tantale	Cuivre	Unité
Densité	ρ	16,64	8,96	$g\,cm^{-3}$
Mod. de cisaillement	μ		48,3	GPa
Coeff. de Poisson	ν	0,338	0,343	-
Param. JC	A	220	90	MPa
Param. JC	B	520	292	MPa
Param. JC	C	0,055	0,025	-
Param. JC	n	0,325	0,31	-
Param. JC	m	0,475	1,09	-
Param. JC	ϵ_0	1	10^{-6}	-
Param. EOS	c_0	3374	3972	$m\,s^{-1}$
Param. EOS	s	1,155	1,478	-
Param. EOS	Γ_0	1,6	2	-
Temp. de fusion	T_m	3523	1356	K
Coeff. capac. therm.	c_V	150	383	$J\,K^{-1}\,Kg^{-1}$
Coeff. conduc. therm.	k	54,4	400	$W\,m^{-1}\,K^{-1}$

TABLEAU IV.1 – Paramètres des matériaux ([34] pour le cuivre, [33] pour le tantale et [58] pour les paramètres EOS).

IV.3.5 Paramètres des matériaux

Les vitesses d'impact en jeu dans le cold spray impliquent des valeurs extrêmement élevées des vitesses de déformation (de l'ordre de $10^7 - 10^8 s^{-1}$). En revanche, les paramètres de JC des matériaux sont estimés par régression des données provenant de certains essais, utilisant les barres de Hopkinson (SHPB, « Split-Hopkinson Pressure Bars »), voir [32] pour une description de la méthode. La technique permet de mesurer le comportement mécanique des matériaux jusqu'à des vitesses de déformation de l'ordre de $10^4 s^{-1}$, bien inférieures à celles atteintes dans le cold spray. La seule solution, à défaut d'une méthode de mesure adaptée aux conditions du cold spray, est donc l'extrapolation des données matériaux en dehors de l'intervalle expérimentalement accessible. En conclusion, il faudra tenir compte, lors de la comparaison entre simulations et observations expérimentales, d'un possible décalage entre les mesures expérimentales et les paramètres à utiliser pour la simulation. Ce décalage a été déjà observé dans la thèse de D. Giraud [59] sur la projection cold spray du titane, où la forme du splat simulé ne correspond pas exactement à celle observée.

IV.4 Logiciel et outils

Le modèle a été implémenté dans le logiciel commercial d'éléments finis Abaqus/Explicit, version 6.12. Le couplage thermomécanique et les modèles d'élasticité (Mie-Gruneisen), de visco-plasticité (Johnson-Cook) et de frottement (Coulomb modifié) étaient déjà implémentés dans Abaqus, ce qui a facilité la mise en place des calculs.

L'approche choisie, en se fondant sur d'autres travaux comme amplement documenté dans le chapitre 1, est du type lagrangien. Une rapide comparaison entre celui-ci et le type eulérien va être maintenant exposée. D'une part, l'approche lagrangienne par éléments finis implique que les nœuds du maillages soient liés à la matière, donc que les éléments se déforment avec cette dernière. De plus, le vide n'étant pas maillé, les frontières des différentes parties du système (par exemple la surface de la particule) coïncident avec des frontières du maillage (surfaces en 3D ou lignes en 2D) et les éléments de chaque partie

sont toujours constitués du même matériau. D'autre part, dans l'approche eulérienne, tout le domaine de simulation est maillé, y compris le vide, les nœuds restent fixés dans l'espace, la matière se déplaçant indépendamment du maillage. Chaque élément peut contenir différentes phases. La matière et les frontières entre les constituants du système traversent les éléments au cours du calcul.

L'analyse dynamique explicite est fondée sur le schéma d'intégration suivant :

$$\begin{aligned}\dot{\mu}_{i+\frac{1}{2}}^N &= \dot{\mu}_{i-\frac{1}{2}}^N + \frac{\Delta t_{i+1} + \Delta t_i}{2} \ddot{\mu}_i^N \\ \mu_{i+1}^N &= \mu_i^N + \Delta t_{i+1} \dot{\mu}_{i+\frac{1}{2}}^N \\ \ddot{\mu}_i^N &= \sum_J (M^{NJ})^{-1} (P_i^J - I_i^J)\end{aligned}\tag{IV.11}$$

où μ^N est un degré de liberté mécanique au nœud N et l'indice i correspond à l'incrément. M est la matrice de masse, P le vecteur des forces appliquées et I le vecteur des forces internes. Les équations de la diffusion de la chaleur sont intégrées de façon similaire :

$$\begin{aligned}\theta_{i+1}^N &= \theta_i^N + \Delta t_{i+1} \dot{\theta}_i^N \\ \dot{\theta}_i^N &= \sum_J (C^{NJ})^{-1} (P_i^J - F_i^J)\end{aligned}\tag{IV.12}$$

où θ^N est la température au nœud N et l'indice i correspond à l'incrément. C est la matrice de capacité thermique, P le vecteur des sources de chaleur et F le vecteur des flux internes de chaleur. Une description plus détaillée de l'algorithme est donnée dans [56].

La procédure explicite intègre les équations IV.12 et IV.13 dans le temps en utilisant un pas Δt variable. Si cet incrément est trop grand, la solution peut devenir instable : les variables commencent à osciller avec des amplitudes de plus en plus élevées. Pour éviter l'instabilité, il faut maintenir les incréments Δt au-dessous d'une valeur t_s dite « limite de stabilité », qui dépend des propriétés des matériaux et des tailles des éléments. Les opérateurs qui intègrent les équations thermomécaniques, explicités en IV.12 et IV.13, sont conditionnellement stables. La limite de stabilité est donnée par l'équation suivante :

$$\Delta t \leq \min \left(\frac{2}{\omega_{\max}}, \frac{2}{\lambda_{\max}} \right)\tag{IV.13}$$

où ω_{\max} est la fréquence la plus haute dans le système d'équations pour la solution mécanique et λ_{\max} est la valeur propre la plus élevée dans le système d'équations pour la solution thermique. L'incrément temporel Δt peut être choisi automatiquement ou être fixé par l'utilisateur. La première solution a été choisie dans cette étude. Abaqus fixe Δt à chaque itération sur la base de l'estimation suivante pour t_s :

$$\begin{aligned}\text{thermique} &: t_s \approx \frac{L_{\min}^2}{2\alpha} \\ \text{mécanique} &: t_s \approx \frac{L_{\min}^2}{c_d}\end{aligned}\tag{IV.14}$$

où L_{\min} est la dimension la plus petite parmi tous les éléments constituant le maillage, $\alpha = k/\rho c$ est le coefficient de diffusion thermique et c_d est la vitesse des ondes de dilatation du matériau. Ces estimations ne sont que des approximations. Pour être au-dessous de la vraie limite de stabilité, l'incrément temporel Δt est choisi par Abaqus de façon à ce

qu'il soit inférieur à la plus petite des deux estimations de t_s par un facteur compris entre $1/\sqrt{2}$ et 1.

Il peut arriver que, en cours de simulation, un élément soit très déformé dans une direction donnée et que son extension se réduise de plusieurs ordres de grandeur. L_{\min} et, par conséquent, Δt subissent la même diminution, ce qui produit un allongement dramatique du temps de calcul.

IV.4.1 Remaillage ALE

Vu les grandes déformations en jeu à l'impact, la distorsion du maillage peut être localement très marquée. Il faut considérer aussi que, dans les algorithmes explicites, le pas d'incrément temporel Δt est proportionnel à la dimension L_{\min} , la plus petite parmi tous les éléments constituant le maillage. Par conséquent, plus un élément est déformé, plus son épaisseur peut diminuer, tout comme l'incrément temporel Δt . Une trop grande diminution de Δt peut empêcher le bon déroulement de la simulation, en allongeant les temps de calcul jusqu'à plusieurs ordres de grandeur.

Une solution à ce problème est apportée dans Abaqus par la technique du remaillage adaptatif (en anglais dans Abaqus « Arbitrary Lagrangian-Eulerian (ALE) adaptive meshing »), qui permet de combiner les caractéristiques des approches lagrangienne et eulérienne. La technique introduit n étapes de remaillage toutes les f itérations temporelles. Les paramètres n et f , choisis par l'utilisateur, représentent respectivement l'intensité (nombre d'itérations de l'algorithme) et la fréquence du remaillage (nombre d'incréments de temps entre deux remaillages). Il faut spécifier que les algorithmes de remaillage implémentés dans Abaqus ne changent pas la topologie du maillage mais se limitent à translater les nœuds, ce qui réduit l'efficacité de l'outil. Bien que les paramètres n et f du remaillage puissent être changés, cela ne suffit pas toujours à assurer le bon déroulement d'une simulation. Dans certains cas en fait, comme détaillé plus tard (cf. IV.8.3), les simulations ont échoué, malgré l'essai d'une multitude de combinaisons des valeurs de n et f .

IV.4.2 Suivi de matière

Une conséquence importante du remaillage est que, lorsque les nœuds sont déplacés par l'algorithme, ces derniers perdent la liaison qu'ils avaient avec les points de matière. Cela signifie, par exemple, que la différence des positions finale et initiale d'un nœud ne représente pas le déplacement d'un point de matière et n'a aucun sens physique. Si, pour un instant donné, les variables des éléments et des nœuds, comme par exemple la température ou la déformation cumulée, maintiennent leur sens physique, cela n'est pas vrai pour un nœud déterminé tout au long du calcul. Autrement dit, la position, température, etc. d'un nœud en fonction du temps ne représentent pas l'évolution du point de matière qu'y était initialement associé.

Le but de l'étude est de simuler, par éléments finis, les champs de déplacement pour la particule et pour le substrat. Il est donc évident que ceux-ci ne sont pas accessibles à partir de la position finale des nœuds du maillage, mais qu'il faut utiliser une autre technique. La réponse a été trouvée grâce à l'outil d'Abaqus, nommé « tracer particle ». Cette technique permet le suivi d'un ensemble de points matière (le « tracer set »), tout le long de la simulation. Le « tracer set » a été défini à partir des positions initiales d'un ensemble de nœuds. L'outil permet de suivre les déplacements des points de matière associés pendant l'impact, jusqu'à leur position finale, qui est sauvegardée. Cette information permet de calculer, par interpolation, les champs de déplacement, utilisés comme base pour la simulation d'empilement. Cette procédure est détaillée dans le chapitre V.

La figure IV.4 illustre le suivi de matière sur un ensemble de points, dans le cas d'une simulation 2D (impact à 500 ms^{-1} d'une sphère de tantale de $20\text{ }\mu\text{m}$ de diamètre, sur substrat en cuivre). La même approche a été appliquée en 3D. Les points de matière suivis sont marqués par des points noirs. A gauche, l'état initial est représenté et, à droite, l'état final. La comparaison des deux images permet de comprendre les déplacements de matière. En regardant la partie au-dessous de la particule, il est évident que, dans l'état final, les points sont plus éloignés les uns des autres horizontalement et plus rapprochés verticalement que dans l'état initial. La compression et le cisaillement induits par l'impact de la particule provoquent l'étirement de la matière. En revanche, en dehors de cette zone, les points se sont accumulés au bourrelet formé par la matière déplacée par l'impact.

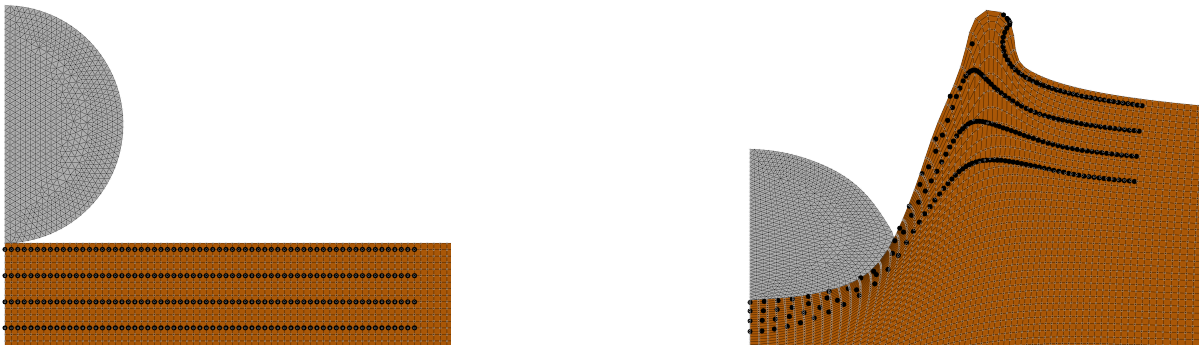


FIGURE IV.4 – A gauche, état initial de la simulation d'impact d'un disque de tantale sur un substrat en cuivre. Le diamètre est de $20\text{ }\mu\text{m}$ et la vitesse 500 ms^{-1} . Les points en noir représentent les points de matière suivis. Ils coïncident avec un ensemble de nœuds à l'instant initial. A droite l'état final de la simulation. Les points de matière suivis ne coïncident plus avec des nœuds.

IV.4.3 Ecouissage

En cold spray, les propriétés des matériaux projetés sont différentes de celles du matériau d'origine. Même si la présence d'oxydes et autres polluants est généralement évitée, les grandes déformations et les vitesses de déformation en jeu entraînent certains effets pouvant modifier de nombreuses propriétés physico-chimiques comme, par exemple les conductivités thermique et électronique, la dureté, etc. Sans rentrer dans les détails, on cite les phénomènes d'écrouissage et de recristallisation dynamique, parmi d'autres, comme étant responsables de tels changements de propriétés.

L'écrouissage, en particulier, joue un rôle majeur quand il s'agit de simuler les impacts « tantale sur tantale ». Au cours de la montée en épaisseur du dépôt, les particules impactent d'autres particules, qui ont été précédemment déposées. Ces dernières, ayant subi de fortes déformations, présentent une dureté augmentée. Ce fait a été pris en compte (cf. IV.5.6), en imposant des valeurs initiales de déformation non nulles aux éléments du substrat pour les impacts sur tantale.

IV.4.4 Résumé des hypothèses

Pour résumer, la liste suivante détaille les hypothèses du modèle d'impact :

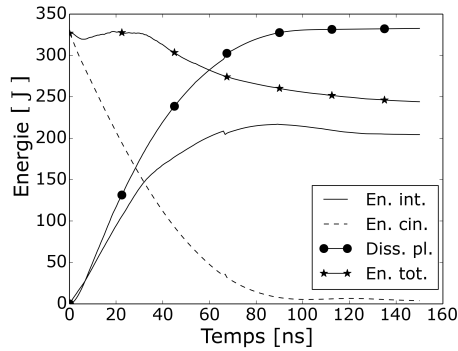
1. Elasticité : équation d'état de Mie-Gruneisen
2. Plasticité : loi de Johnson-Cook
3. Les particules ont, à l'état initial, un vecteur vitesse perpendiculaire au plan du substrat et un moment de rotation nul.

4. Couplage thermomécanique
5. La conduction de la chaleur entre la particule et le substrat est négligée
6. Frottement : loi de Coulomb modifiée
7. L'adhérence n'est pas considérée
8. Températures initiales : 200 °C pour la particule et 30 °C pour le substrat

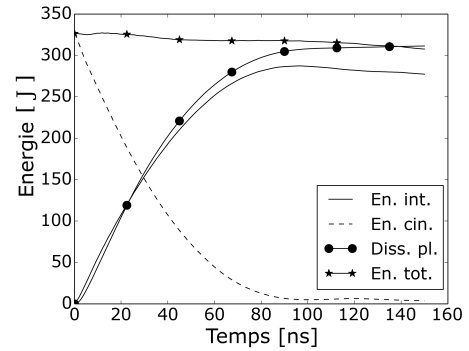
IV.4.5 Bilan énergétique et remaillage

Dans les calculs numériques, faire un bilan énergétique est une bonne pratique pour s'assurer du bon déroulement des simulations. Il est, notamment, primordial de vérifier que l'énergie totale est conservée. Pour chaque simulation, l'évolution temporelle des énergies du modèle a donc été surveillée.

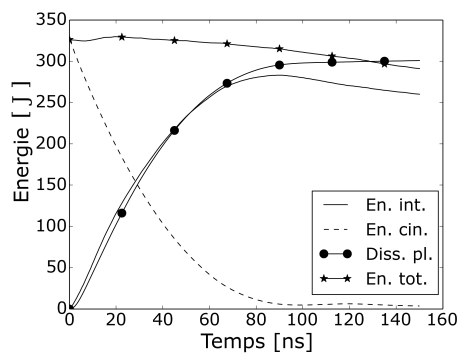
La figure IV.5 montre quelques exemples de bilan énergétique des simulations en 2D, pour différentes tailles de maillage et matériaux. Les courbes représentent respectivement l'énergie interne (chaleur), l'énergie cinétique, l'énergie dissipée par plasticité et l'énergie totale. L'énergie totale (courbes avec étoiles) n'est pas toujours conservée. Il semble exister des effets dus à la taille du maillage et aux matériaux.



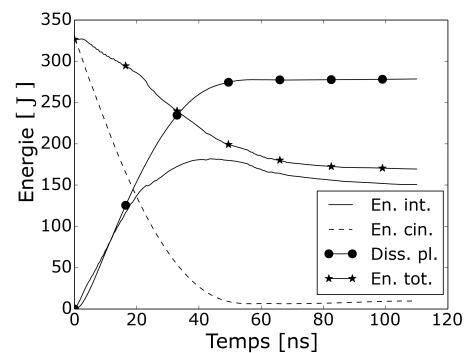
(a) Ta sur Cu, maillage fin



(b) Ta sur Cu, maillage moyen



(c) Ta sur Cu, maillage grossier



(d) Ta sur Ta

FIGURE IV.5 – Bilan énergétique des simulations en 2D : courbes des énergies interne, cinétique, totale et de la dissipation plastique, en fonction du temps.

Cette question demande une attention particulière car elle est liée à la fiabilité même des simulations. Le remaillage, expliqué en IV.4.1, est la seule partie difficilement maîtrisable dans le modèle. Il a donc été soupçonné d'être responsable de la non-conservation de l'énergie totale. Afin d'approfondir la question, une simulation *ad hoc* a été mise en place en 2D : un disque entrant en collision avec un substrat à une vitesse de 70 ms^{-1} ,

bien inférieure à celles normalement en jeu dans le cold spray. Cette vitesse réduite limite évidemment la déformation à l'impact, ce qui rend le remaillage non nécessaire pour la bonne réussite du calcul. Les résultats des deux simulations, l'une avec remaillage ALE et l'autre sans, sont comparés en figure IV.6, qui montre les courbes des énergies totales pour les deux cas. Si l'énergie est (presque) conservée pour la simulation sans remaillage (courbe pointillée), cela n'est pas le cas pour la simulation avec remaillage (courbe continue). Cette comparaison montre sans ambiguïté, donc, que la perte d'énergie est causée par le remaillage.

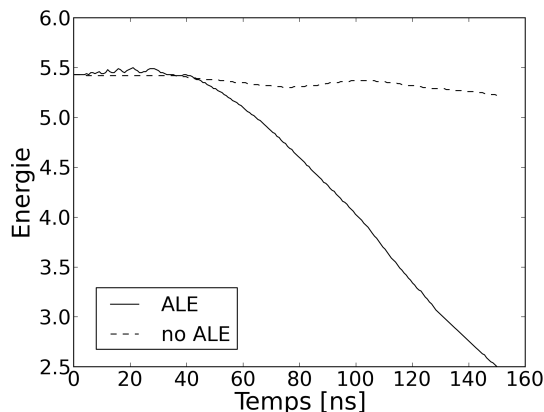


FIGURE IV.6 – Bilan énergétique des simulations à vitesse réduite.

Pour réduire l'impact du remaillage sur le bon déroulement des simulations, une stratégie possible consiste à limiter le remaillage à la première phase de l'impact, là où la majorité de la déformation se concentre. A cette fin, l'intervalle temporel de chaque simulation a été divisé, selon les cas, en deux ou trois pas (« steps » dans Abaqus). Pour chaque pas, il est, en effet, possible de fixer des paramètres de remaillage différents ou même d'arrêter le remaillage. En 2D, deux pas ont été suffisants : le premier caractérisé par un remaillage intense, couvre la période des grandes déformations et le deuxième, sans remaillage, la phase de relaxation. En 3D, en revanche, trois pas ont souvent été nécessaires : un premier avec remaillage intense, un deuxième avec un remaillage modéré et le troisième, toujours pour la phase de relaxation, sans remaillage.

La figure IV.7 montre le bilan énergétique pour les simulations d'impact de particules réelles, qui sera étudié en détail en § IV.8.3.

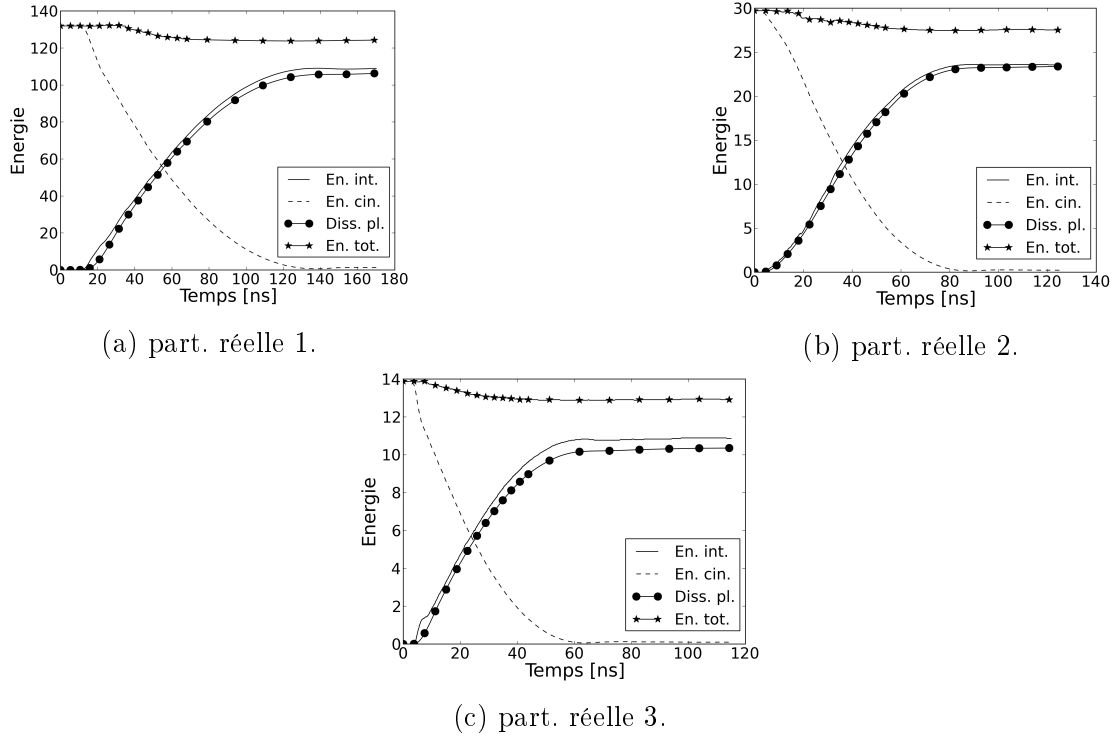


FIGURE IV.7 – Bilan énergétique des simulations d'impact des particules réelles.

IV.5 Simulations 2D

Le modèle a été mis en place, dans un premier temps, pour des disques en 2D. Les effets des différents paramètres ont été étudiés dans ce cadre, en tirant profit des relatives rapidité et simplicité des simulations en 2D par rapport au 3D.

IV.5.1 Modèle plan et axisymétrique

Des simulations d'impact en 2D de particules idéalisées ont été faites. Certains objets qui possèdent des symétries particulières peuvent être représentés en 2D. Un cylindre infiniment long et une sphère ont, par exemple, une représentation bidimensionnelle qui naît, pour le premier, de la symétrie par projection sur un plan normal à l'axe du cylindre et, pour la deuxième, de la symétrie par rotation autour d'un axe normal au plan du substrat. Les deux modèles sont appelés respectivement plan et axisymétrique. Une représentation graphique est donnée en figure IV.8.

Il faut ajouter que les conditions initiales doivent aussi respecter la même symétrie. Cela signifie en particulier que, dans le cas axisymétrique, la vitesse initiale de la particule v_0 ne peut qu'être parallèle à l'axe de symétrie ; pour le modèle plan, en revanche, la restriction est moins forte : v_0 doit être contenue dans le plan. Il est donc possible de simuler dans ce contexte des impact avec un angle. Quand cet angle est de 90° (\vec{v}_0 perpendiculaire au plan du substrat), l'ultérieure symétrie par réflexion permet de réduire le domaine à une seule des deux moitiés symétriques.

IV.5.2 Effet de la taille de maillage

Une première série de simulations a été faite pour évaluer l'effet de la taille du maillage sur la déformation, en utilisant le modèle plan. Le domaine de simulation est présenté en fig. IV.9. Le substrat est un rectangle de taille $320 \times 250 \mu m^2$ et la particule un disque de



FIGURE IV.8 – Représentations 2D d'un cylindre infini (modèle plan, à gauche) et d'une sphère (modèle axisymétrique, à droite).

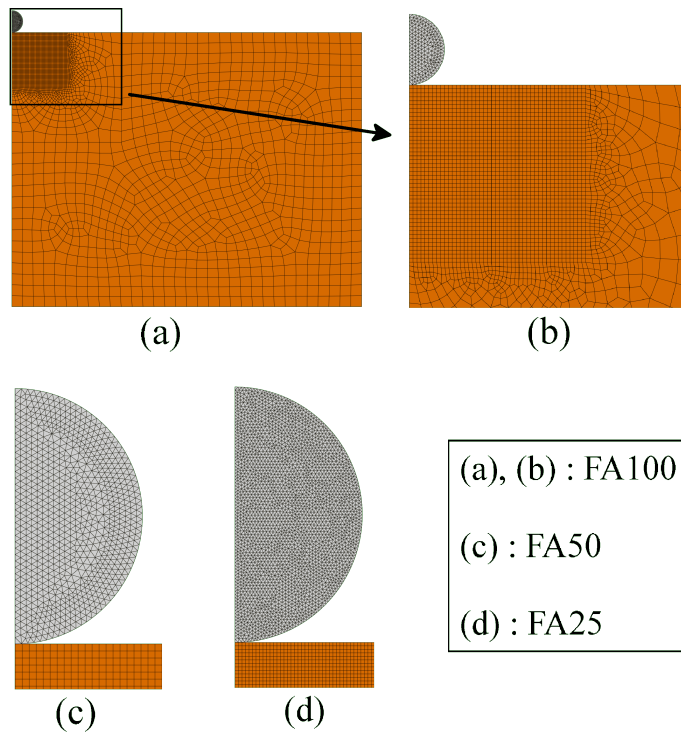


FIGURE IV.9 – Comparaison entre différentes densités de maillage avant déformation. (a) : domaine de simulation entier. (b) : détail de la zone finement maillée. (c), (d) : détail de la particule.

20 μm de diamètre, ayant une vitesse de 500 ms^{-1} . Bien que la partie concernée par la déformation plastique fût du même ordre de grandeur que la particule, la taille du substrat a été choisie de façon à retarder la réflexion des ondes de contrainte et, donc, à limiter leurs interactions avec les déformations. Pour alléger le nombre de mailles, un maillage hétérogène est utilisé : seulement la partie concernée par la déformation à l'impact a été maillée finement.

Trois différentes densités de maillage ont été essayées, avec des éléments mesurant 1, 0,5 et 0,25 μm en taille linéaire moyenne. Les trois sont nommés en fig. IV.9 respectivement FA100, FA50 et FA25, où FA fait référence à la méthode de maillage choisie (« Advancing Front », cf. [56]). En revanche, la majorité de l'aire du substrat a été remplie par un maillage plus lâche (15-20 fois la taille linéaire des éléments de la première zone) et une zone de transition réalise la jonction entre les deux parties. Cette transition du maillage fin au plus lâche représente une barrière pour les composantes à haute fréquence des ondes de contrainte, qui seront donc partiellement réfléchies. On doit accepter ce défaut : si en 2D on peut effectuer des simulations avec un maillage uniforme et raffiné, en 3D le nombre d'éléments deviendrait trop grand et ralentirait énormément les calculs.

Pour la particule, la densité de maillage est comparable à celle de la zone finement maillée du substrat.

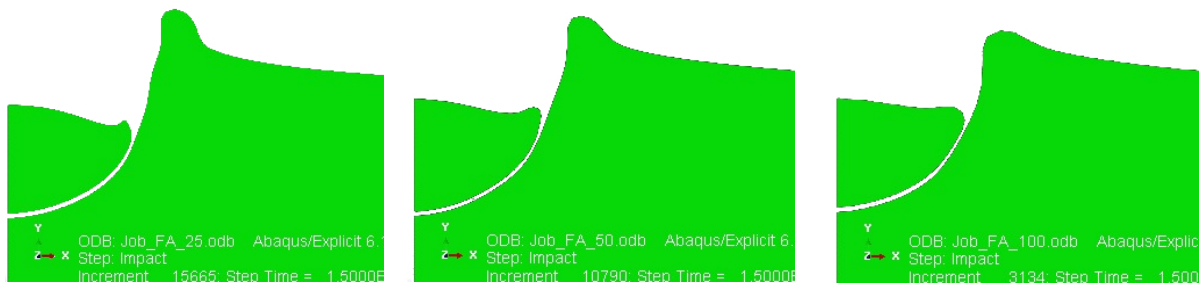


FIGURE IV.10 – Effet de la densité de maillage sur la forme du splat (Ta sur Cu, diamètre de 20 μm , vitesse de 500 ms^{-1}) après déformation (150ns). De gauche à droite, les maillages FA25, FA50 et FA100.

La figure IV.10 montre les résultats des simulations précédemment citées. La taille moyenne des éléments joue un grand rôle dans la localisation de la déformation. En effet, le cisaillement a tendance à se concentrer à proximité de l'interface particule/substrat. Dans le modèle par éléments finis, les valeurs du cisaillement, de la température, de la déformation plastique équivalente, etc. sont moyennées sur le volume des éléments. Plus les éléments sont petits, plus la résolution spatiale est élevée et plus les phénomènes localisés sont évidents. Pour des éléments plus grands, en revanche, les résultats sont moyennés sur des fortes volumes et les phénomènes localisés moins marqués. Pour cette raison, une diminution de la taille du maillage entraîne une augmentation de la déformation plastique et de la température pour les éléments les plus proches à l'interface. Cet effet est bien visible en Fig. IV.11. Ici, les déformations plastiques accumulées et les températures, 20 ns après le premier contact, sont observées, pour les trois tailles de maillage (1, 0,5 et 0,25 μm). L'augmentation de la température pour les éléments proches de l'interface, entre les cas 1 et 0,5 μm , est observée.

En comparant les cas 0,5 et 0,25 μm , une inversion de tendance inattendue apparaît. Les figures de déformation plastique cumulée (PEEQ dans la suite) montrent que, pour le maillage à 0,25 μm , c'est le substrat qui se déforme le plus : la génération d'un bout de matière très déformée est visible, qui pourrait correspondre à une expulsion de matière fondue ou presque (en anglais « jet »). Ce phénomène est moins intense pour le maillage

à $0,5 \mu m$. Dans ce cas, c'est la particule qui absorbe la majorité de la déformation, avec un réchauffement en conséquence.

Le choix de la taille du maillage est donc un compromis : d'une part, plus le maillage est dense, plus la simulation devrait s'approcher de la réalité. D'autre part, les ressources informatiques (mémoire et temps de calcul) limitent le nombre d'éléments. Enfin, des difficultés liées à la concentration de la déformation plastique et de la température surviennent pour des maillages très denses. Cela peut produire, par exemple, l'écrasement total d'un volume et empêcher, de ce fait, la bonne réussite de la simulation.

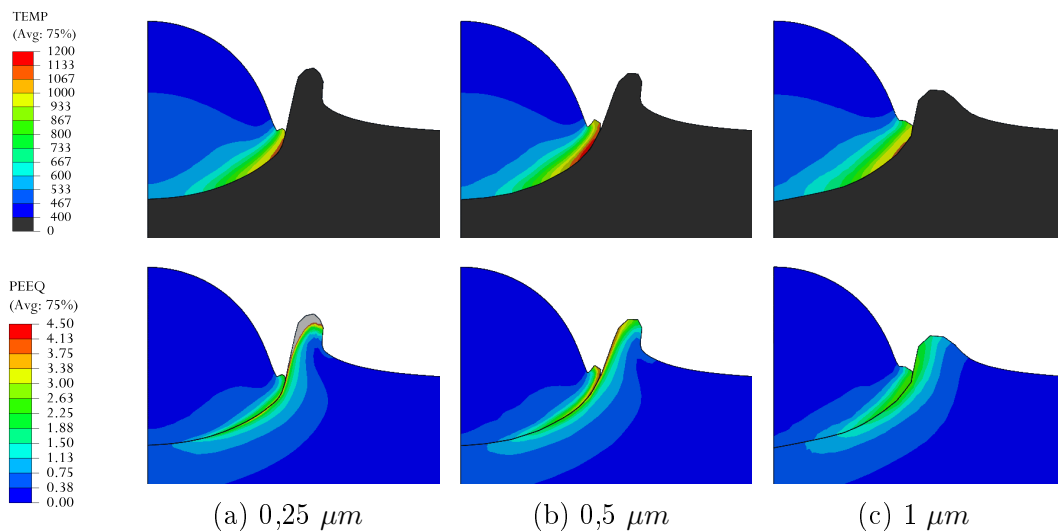


FIGURE IV.11 – Etat intermédiaire (20ns depuis le premier contact) de la simulation d'un splat de Ta sur Cu (diamètre de $20 \mu m$, vitesse de $500 ms^{-1}$). Effet de la densité de maillage : en haut, température (en Kelvin), en bas, déformation plastique cumulée.

IV.5.3 Effet des paramètres de frottement

Le modèle de Coulomb modifié, qui a été présenté en détail en partie IV.3.4, contient deux paramètres : le coefficient de frottement et le cisaillement critique $\bar{\tau}_{max}$. Le premier a été étudié dans plusieurs études de modélisation (voir le chapitre 1) et il semble présenter un effet négligeable sur la dynamique d'impact. Le coefficient de frottement, pour les phénomènes d'impact, ne peut être déterminé précisément. La valeur choisie (0,3) en est donc soit purement hypothétique, soit le fruit d'une correspondance discutable avec les phénomènes de non-impact (cf. [60]). Il a été décidé de concentrer l'étude sur $\bar{\tau}_{max}$. Quand $\bar{\tau}_{max} \rightarrow \infty$, le modèle modifié tend vers un modèle de Coulomb classique.

En début du chapitre (fig. IV.1c), il a été montré que l'énergie dissipée par frottement était négligeable par rapport à celle dissipée par plasticité. Néanmoins, les effets de ce paramètre sur la dynamique de l'impact sont bien visibles dans les résultats des simulations présentés en fig. IV.12. Uniquement les cas de Ta sur Cu est montré car, ici, les effets y étaient plus visibles, du fait que la particule pénètre plus profondément dans le substrat (impact d'une particule plus dure et dense que le substrat). Dans ce cas, une forte contrainte tangentielle se produit dans le substrat, en proximité de l'interface avec la particule. S'il y a frottement ou adhésion, cette contrainte peut se transmettre à la particule et entraîner une déformation supplémentaire. Pour des valeurs relativement faibles de $\bar{\tau}_{max}$ (jusqu'à 100 MPa), la transmission de la contrainte est limitée et la particule peut glisser, tout en s'enfonçant, sur la surface du substrat en déformation (cf. fig. IV.12 a-b). Pour des valeurs plus élevées (> 1 GPa), par contre, la transmission de la contrainte à

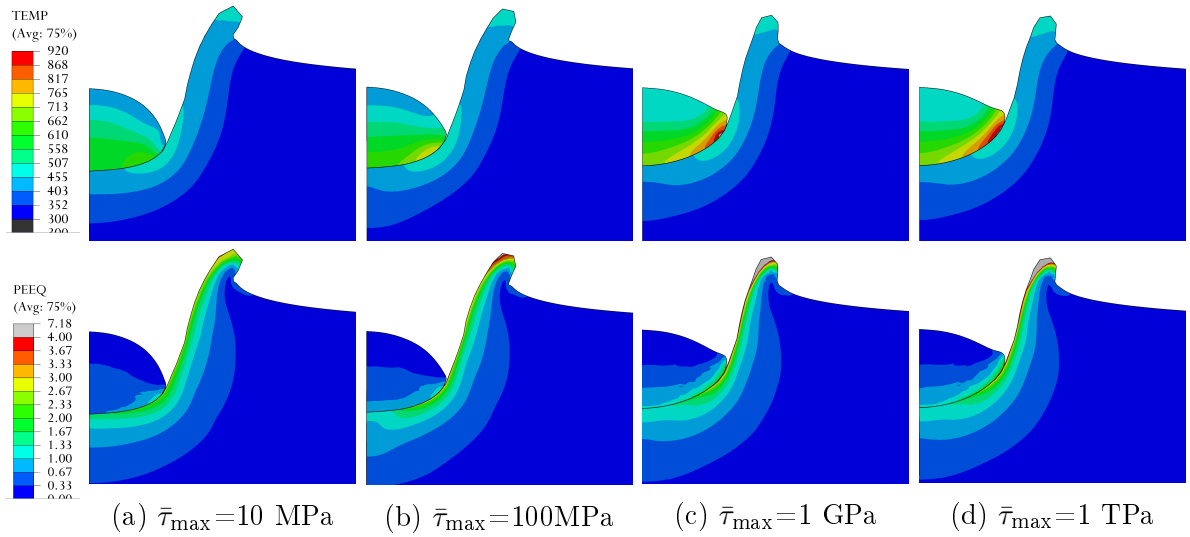


FIGURE IV.12 – Effet de $\bar{\tau}_{\max}$ sur la forme, sur la température et sur la déformation plastique cumulée pour un splat de Ta sur Cu.

la particule augmente et contribue à la déformation plastique, ce qui se reflète dans des formes plus allongées et des températures plus élevées (cf. fig. IV.12 c-d).

Le taux d'écrasement (η) est défini dans cette étude, pour des particules sphériques ou ellipsoïdales, par :

$$\eta = \frac{L}{L_0} \frac{H_0}{H} \quad (\text{IV.15})$$

où L et H représentent, respectivement, la longueur et la hauteur de la particule. L'indice 0 indique l'état initial. La figure IV.13 présente l'état initial et final de l'impact d'une particule elliptique, qui définissent le taux d'écrasement pour des particules pas forcément sphériques.



FIGURE IV.13 – Définition du taux d'écrasement.

La figure IV.14 montre le taux d'écrasement et la profondeur maximale atteinte par la particule en fonction de $\bar{\tau}_{\max}$. Le premier augmente et la deuxième diminue avec $\bar{\tau}_{\max}$. En effet, pour des valeurs de $\bar{\tau}_{\max}$ élevées, une plus grande partie de l'énergie cinétique initiale est dissipée par la particule. Il en reste donc moins pour la déformation du substrat. Cela se traduit dans un enfoncement moindre de la particule dans le substrat.

Une tentative d'estimation de $\bar{\tau}_{\max}$, fondée sur des observations expérimentales, est exposée plus tard dans ce même chapitre (cf. § IV.7).

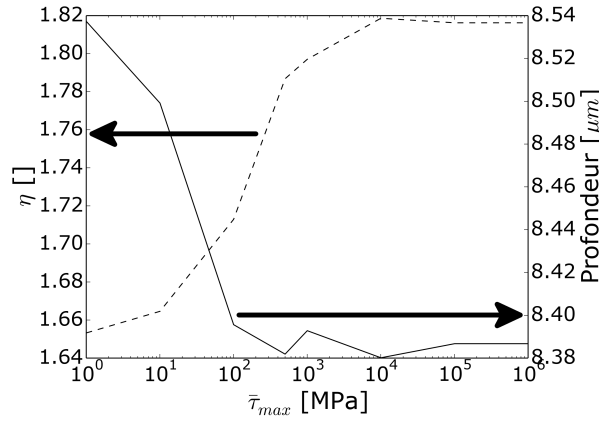


FIGURE IV.14 – Effet de $\bar{\tau}_{\max}$ sur l'écrasement de la particule et la profondeur maximale atteinte.

IV.5.4 Effet de la forme des particules : ellipses

La grande majorité des études de simulation d'impact pour le CS utilise des particules sphériques. On a pourtant décidé d'examiner le rôle de la forme de la particule par une série de simulations en 2D avec des particules elliptiques. Un travail récent [19] a réalisé le même type de simulation, pour d'autre matériaux. L'étude est limitée à la simulation d'impact en 2D d'une particule elliptique à forme (excentricité) et vitesse fixées, pour trois différentes orientations à l'impact.

Plusieurs paramètres ont été étudiés dans cette série de simulations. D'abord, la forme de la particule, c'est-à-dire l'excentricité, a varié. Un des deux demi-axes a été fixé à $10 \mu m$ et l'autre, variable entre 2 et $8 \mu m$. Ensuite, d'autres conditions ont été explorées : l'orientation de la particule, sa vitesse et le type de substrat. Les impacts ont été réalisés sur les deux substrats (Cu et Ta) à différentes vitesses ($500, 600, 700$ et 800 ms^{-1}) et avec différentes orientations de la particule (angles entre le plan du substrat et l'axe majeur de la particule : $0^\circ, 30^\circ, 45^\circ, 60^\circ$ et 90°). Des résultats pour les deux substrats, cuivre et tantale, sont montrés respectivement en figure IV.15 et IV.16. Ceux-ci ne sont illustrés que pour les particules les plus allongées (deuxième demi-axe de $2 \mu m$) et pour une vitesse d'impact de 600 ms^{-1} . Les autres simulations confirment, en effet, les tendances présentées ci-après. Les effets observés sont plus intenses pour une vitesse et une ellipticité plus élevées.

Les simulations montrent aussi l'effet de l'orientation d'une particule non sphérique. L'impact horizontal (fig. IV.15a et IV.16a) produit des petites déformations et, par conséquent, des faibles températures. Au contraire, l'impact à 90° (fig. IV.15d et IV.16d) produit les températures les plus grandes. Les cas intermédiaires causent l'expulsion de matière, provenant notamment du substrat, sous forme de jet. C'est la première couche, qui est très déformée et chauffée, qui a tendance à être expulsée.

Les travaux publiés sur la vitesse critique, par exemple [61] et [7], utilisent des poudres sphériques : les effets liés à la forme des particules ne sont pas pris en compte. Les résultats présentés ci-dessous montrent que ces effets sont loin d'être négligeables. En effet, pour un matériau et une vitesse donnés, des grands écarts peuvent exister entre l'impact d'une sphère et d'une ellipse. De plus, comme montré dans les figures IV.15, IV.16 et IV.17, l'orientation à l'impact est un paramètre très important.

On pourrait se poser différentes questions sur l'orientation des particules. D'abord, existe-t-il une orientation préférentielle à l'impact ? Les textes de mécanique des fluides, comme par exemple [62], montrent que, pour des particules en mouvement dans un fluide, il existe des orientations stables en fonction de certaines symétries dans leur forme. En

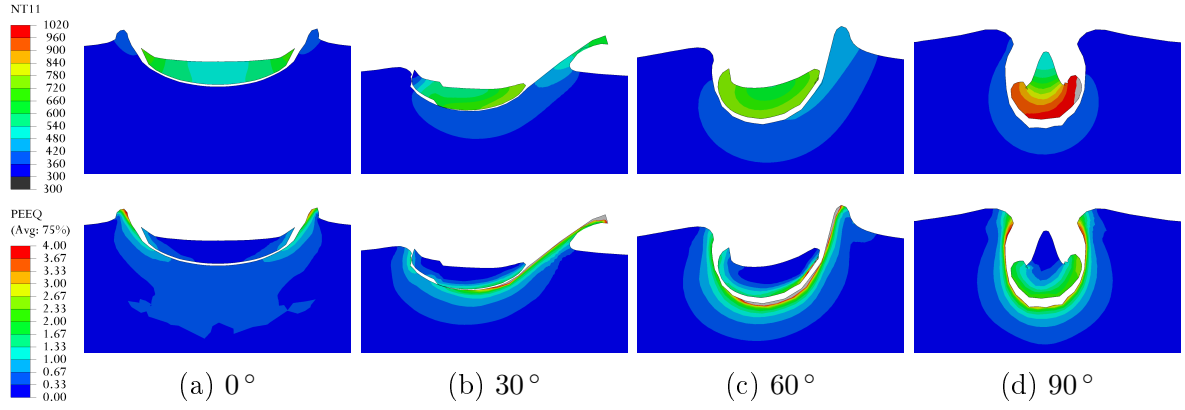


FIGURE IV.15 – Effet de l'orientation pour des impacts d'une particule elliptique ($r1 = 10 \mu m$, $r2 = 2 \mu m$) de tantale sur substrat en cuivre, à $600 ms^{-1}$. Les figures montrent la température (en Kelvin) en haut et la déformation plastique cumulée en bas.

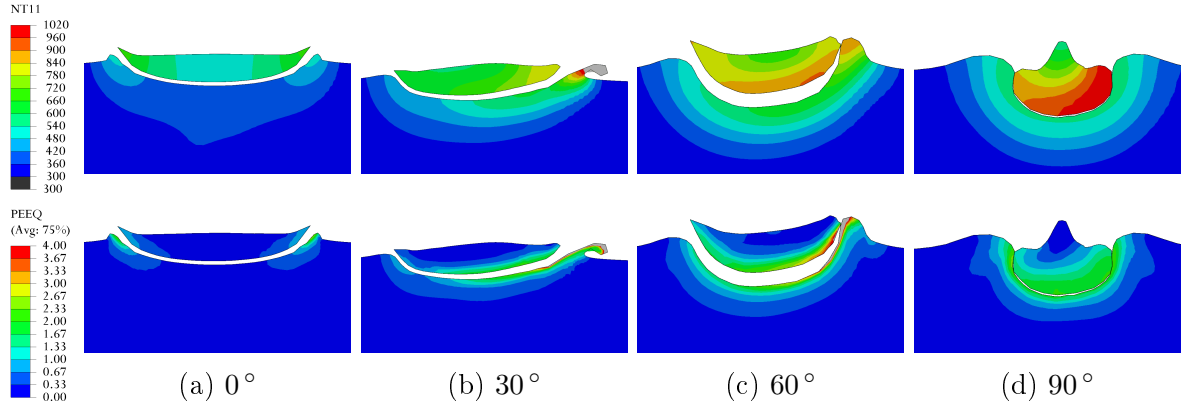


FIGURE IV.16 – Effet de l'orientation pour des impacts d'une particule elliptique ($r1 = 10 \mu m$, $r2 = 2 \mu m$) de tantale sur substrat en tantale, à $600 ms^{-1}$. Les figures montrent la température (en Kelvin) en haut et la déformation plastique cumulée en bas.

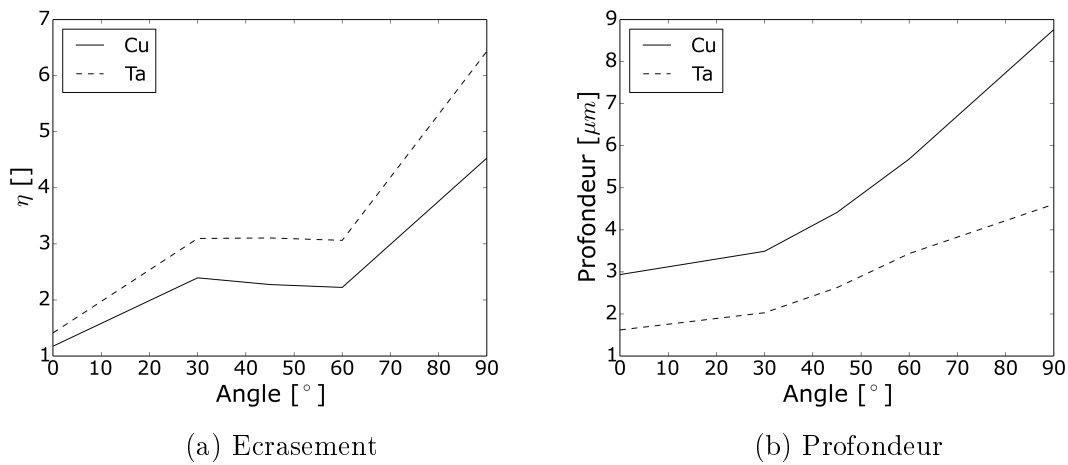


FIGURE IV.17 – Effet de l'orientation pour des impacts d'une particule elliptique ($r1 = 10 \mu m$, $r2 = 2 \mu m$) à $600 ms^{-1}$. Les figures montrent (a) l'écrasement et (b) la profondeur maximale atteinte.

revanche, quand les particules sont irrégulières et n'ont pas de symétrie, il n'y a pas d'orientation stable. De plus, il faut considérer que, même pour des sphères, les collisions des particules en vol, l'interaction avec l'arc de choc (nommé en bibliographie « bow shock », voir par exemple [63]) et avec les parois de la buse peuvent entraîner une rotation des particules, qui empêcherait le maintien d'une orientation déterminée.

Dans le cas de particules irrégulières, comme c'est le cas pour cette étude, il n'existe donc pas d'orientation préférentielle : les particules sont donc en rotation à cause de leur forme, en plus des interaction mentionnées ci-dessus. On pourrait maintenant s'interroger sur la répartition statistique des orientations, pour une forme donnée. Vu les études de mécanique des fluides, il est naturel de penser que toutes les orientations n'ont pas la même probabilité. La complexité de la question appelle une étude plus approfondie sur ce sujet. Dans la suite, pour simplicité, toutes les orientations seront considérées équiprobables.

IV.5.5 Effet de la rugosité du substrat

Pendant la construction du dépôt, les impacts des particules se font sur une surface très irrégulière, constituée de particules précédemment déposées. L'effet de la rugosité sur l'impact est à l'étude dans cette partie. Une série de simulations a été effectuée, avec l'impact d'une particule sphérique sur des substrats rugueux. Les surfaces de ces derniers sont décrites par des sinusoïdes de différentes amplitudes et longueurs d'onde, mesurés en multiples de d_p , le diamètre de la particule. Ce dernier a été fixé à $20 \mu m$. Deux vitesses d'impact ont été essayées, 500 et $700 m s^{-1}$. Les caractéristiques des différentes surfaces sont résumées dans le tableau IV.2.

λ	a
$4d_p$	d_p
$2d_p$	$d_p, d_p/2, d_p/4, d_p/8$
d_p	$d_p/2, d_p/4, d_p/8$
$d_p/2$	$d_p/2, d_p/4$

TABLEAU IV.2 – Paramètres caractéristiques des rugosités du substrat étudiées par simulation. La surface du substrat est représentée par la sinusoïde $a \sin(2\pi x/\lambda)$, d'amplitude a et longueur d'onde λ , d_p est le diamètre de la particule, fixé à $20 \mu m$.

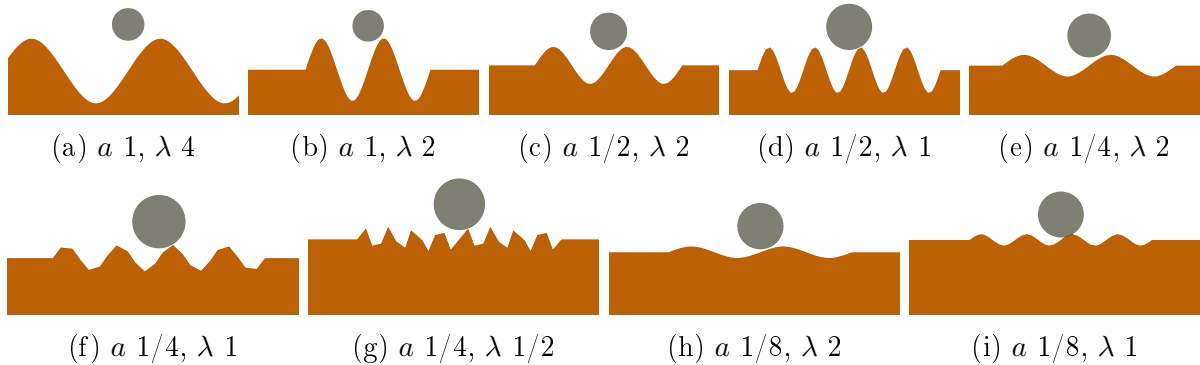


FIGURE IV.18 – Rugosités de substrat essayées par simulation (état initial). Les paramètres a et λ sont en unités de d_p . La particule est sphérique (diamètre $d_p = 20 \mu m$), à une vitesse de $500 m s^{-1}$.

Les figures montrent les résultats (température et déformation plastique équivalente) des simulations pour une vitesse d'impact de $500 m s^{-1}$. Les mêmes phénomènes sont observables pour les impacts à $700 m s^{-1}$. pour chaque rugosité

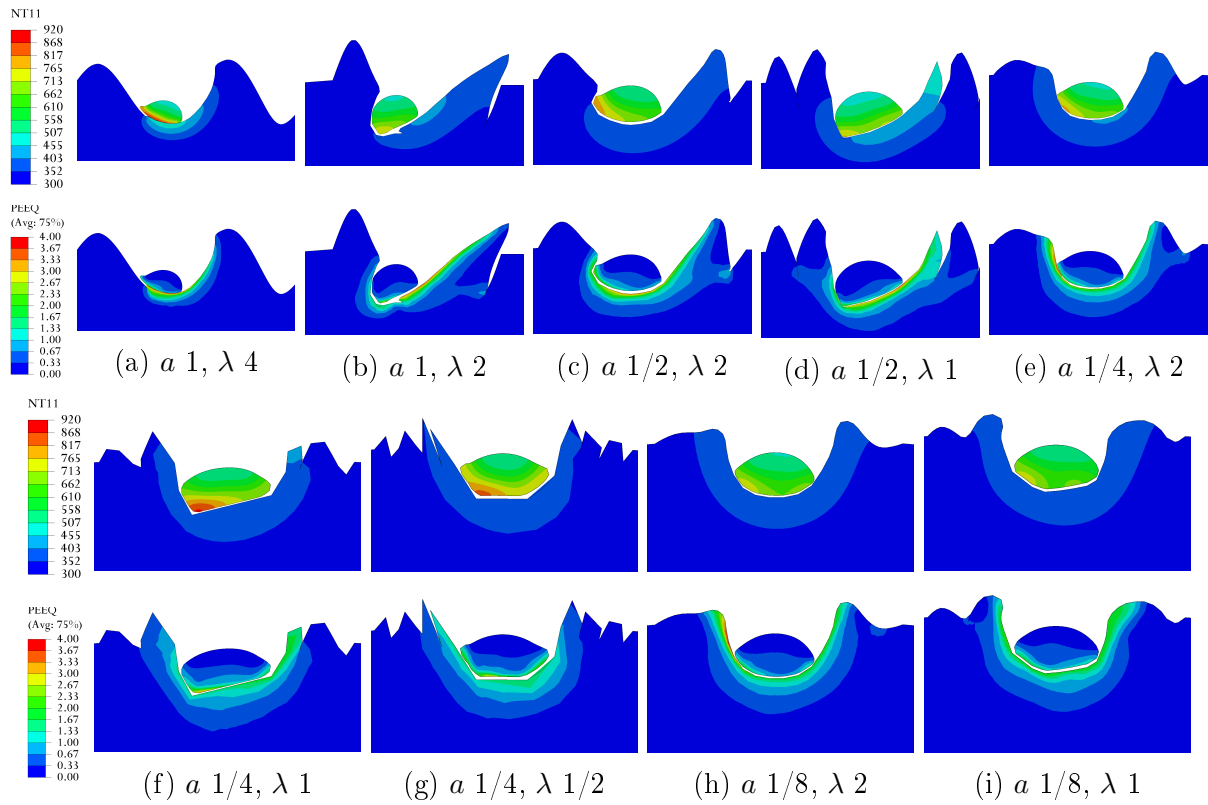


FIGURE IV.19 – Résultats des simulations (température, en haut, et déformation plastique cumulée, en bas) pour l'impact de tantale sur cuivre.

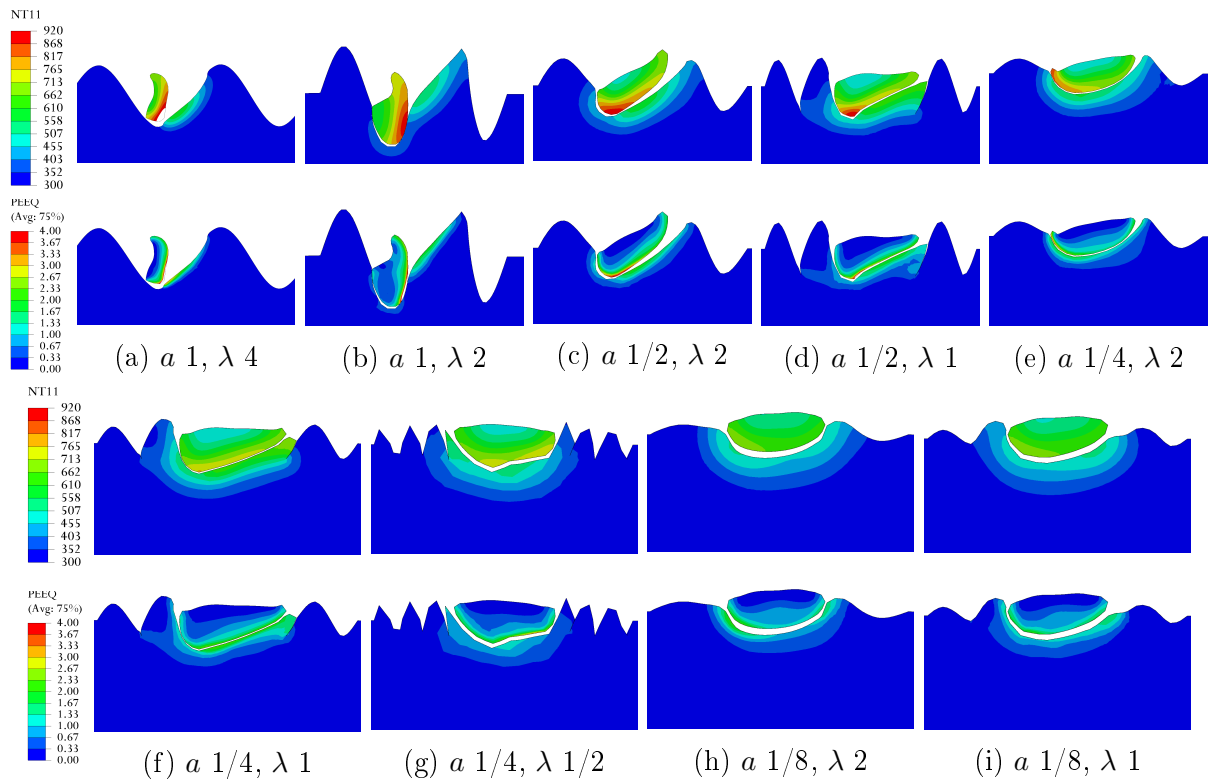


FIGURE IV.20 – Résultats des simulations (température, en haut, et déformation plastique cumulée, en bas) pour l'impact de tantale sur tantale.

L'analyse des résultats peut être résumée dans les trois conclusions suivantes :

1. Macro-rugosité ($a \geq \frac{d_p}{2}$) : la particule tend à glisser jusqu'au fond de la vallée.
2. Meso-rugosité ($a \leq \frac{d_p}{2}$, $\lambda \geq d_p$) : l'état final est approximativement la somme de la rugosité initiale du substrat et des déformations à l'impact (superposition linéaire).
3. Micro-rugosité : les petites rugosités disparaissent après l'impact. Le seul effet remarquable est la concentration de la déformation plastique des pointes et l'amortissement provoqué par leur déformation, au détriment de l'enfoncement de la particule.

IV.5.6 Estimation de l'écrouissage

Pendant la construction du dépôt, les particules de tantale vont s'écraser sur des particules déjà déposées. Ces dernières ont déjà subi la déformation à l'impact donc se trouvent dans un état écroui, par rapport au matériau d'origine. La conséquence principale est que les particules s'écrasent sur un substrat plus dur que le tantale brut. Pour cette raison, des simulations qui permettent de caractériser l'état d'écrouissage des particules déjà déposées ont été mises en place. En vue de l'application au 3D, le modèle axisymétrique d'une sphère a été utilisé.

Dans cette série de simulations, l'impact d'une particule sur un substrat en cuivre a été considéré. Cette dernière avait un diamètre de 2, 5, 7, 10, 15, 20, 30, 40, 50 ou 60 μm . Pour chaque diamètre, trois vitesses différentes ont été utilisées, en accord avec les mesures expérimentales de la partie IV.6, qui suit. Pour chaque simulation, on s'est intéressé au chemin diamétral vertical de la particule, illustré en figure IV.21a. La déformation plastique équivalente, à l'état final, a été enregistrée le long de ce chemin.

Les résultats sont montrés en Figure IV.21b. Si on normalise, comme dans la figure, la distance sur le diamètre initial de la particule, les courbes sont comparables entre elles. C'est, en effet, la vitesse à l'impact, plutôt que la taille de la particule qui influence le profil de la déformation plastique équivalente. A des vitesses plus élevées correspondent des déformations plus grandes et des états finaux plus écrouis. En revanche, la taille de la particule donne l'échelle de variation spatiale de ce profil.

La situation réelle d'un dépôt en formation est trop complexe pour être modélisée, car la déformation plastique cumulée donc l'écrouissage a tendance à se localiser et à devenir hétérogène. Dans cette étude, on s'est contenté d'une estimation à appliquer globalement au substrat comme expliqué dans la suite.

L'état d'écrouissage des particules subjacentes a été évalué dans une simulation d'impact double. Pour cela, deux particules ayant, pour simplifier, la même taille et la même vitesse, ont le même point d'impact : la première s'écrase sur le substrat en cuivre et la deuxième se superpose, quelque temps après, à la première. La distance initiale entre les deux particules (qui est purement verticale) a été choisie de façon à ce que la deuxième touche la première quand celle-ci est déjà dans la phase de relaxation, afin d'éviter que les deux déformations aient lieu en même temps. Tout comme pour les impacts simples, le profil de la déformation plastique équivalente est mesuré le long du chemin diamétral vertical de la particule (dans ce cas, la première à percuter le substrat). Ce profil est présenté en figure IV.22.

Un profil d'écrouissage a été ajusté aux données des simulations de la figure IV.21b et a été utilisé dans les simulations d'impact des particules réelles (voir IV.8.3). Ce profil, présenté en figure IV.23, correspond à l'équation :

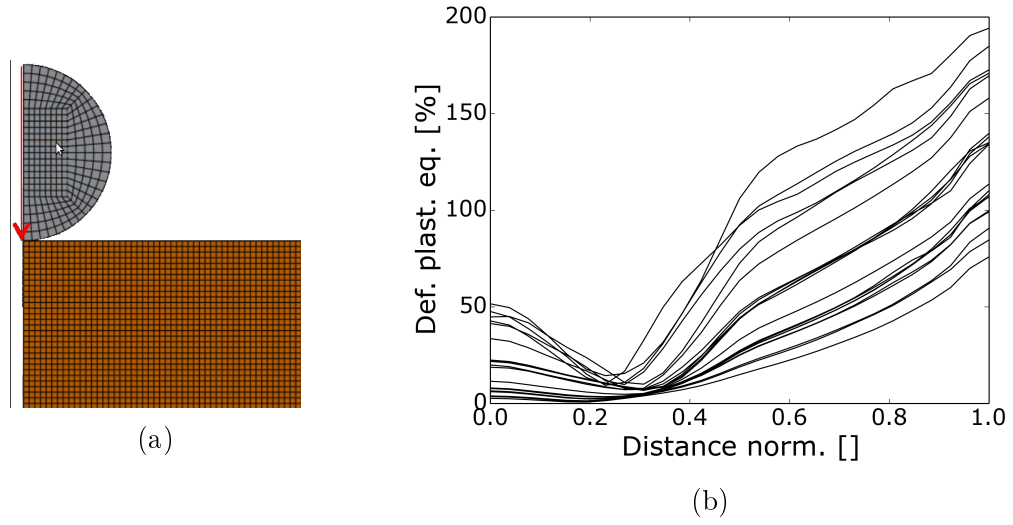


FIGURE IV.21 – (a) : Illustration du chemin diamétral vertical de la particule, où la déformation plastique équivalente a été mesurée.
 (b) : Déformation plastique équivalente, le long du chemin diamétral vertical de la particule. L'axe des abscisses représente la distance normalisée sur le diamètre initial de la particule. Chaque courbe est issue d'une simulation différente, où la taille et la vitesse de la particule ont varié (diamètres de 2, 5, 7, 10, 15, 20, 30, 40, 50, 60 μm et trois vitesses).

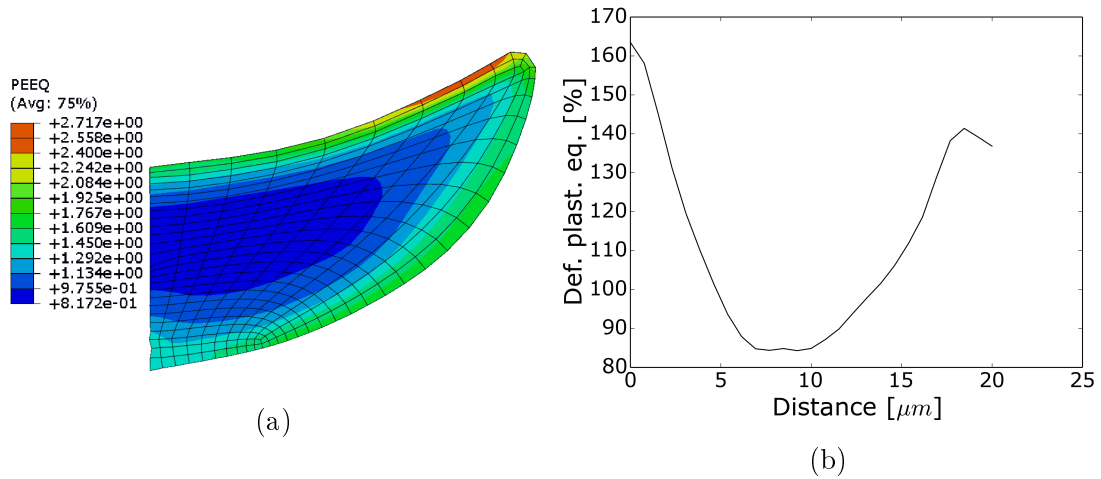


FIGURE IV.22 – (a) : Etat final de la première particule, pour la simulation de deux impact successifs. La déformation plastique équivalente est représentée.
 (b) : Déformation plastique équivalente, le long du chemin diamétral vertical de la première particule. L'axe des abscisses représente la distance normalisée sur le diamètre initial de la particule.

$$\epsilon_{\text{plast}} = \begin{cases} 1,35 \left(\frac{z}{10}\right)^3 - 0,35 \left(\frac{z}{10}\right)^2 + 0,1 & \text{pour } 0 < z < 10, \\ 1,1 & \text{pour } z > 10. \end{cases} \quad (\text{IV.16})$$

où z est la profondeur mesurée en μm , à partir de la surface initiale du substrat.

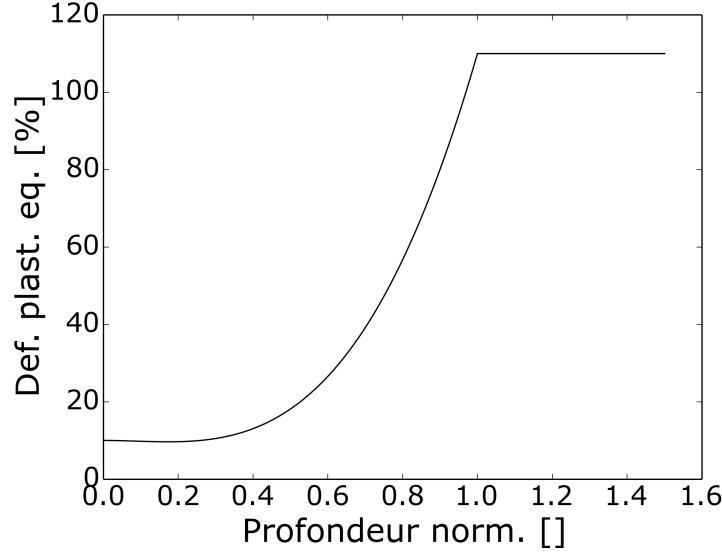


FIGURE IV.23 – Courbe d'écroûissage ajustée aux données de la figure IV.21b, utilisée dans la simulation d'impact des particules réelles.

IV.6 Mesures de vitesse

Afin de simuler les impacts dans des conditions proches de l'expérience, il est utile de connaître la distribution des vitesses des particules. Une expérimentation spéciale (cf. chapitre II) à, donc, été conçue et installée au laboratoire de projection thermique du CEA Le Ripault, pour mesurer aux même temps par voie optique taille et vitesse des particules en vol. Le choix de certains paramètres de projection, notamment la pression et la vitesse du gaz principal, ainsi que certaines propriétés de la poudre (principalement la forme et la taille des particules) déterminent la distribution des vitesses à l'impact.

Le procédé de mesure de vitesse en vol a été automatisé grâce à l'utilisation de l'analyse d'image, ce qui a permis l'estimation d'une cinquantaine de couples (taille, vitesse) pour des particules de diamètres différents, situées sur l'axe du jet. Les résultats sont présentés en figure IV.24.

Une relation simple est utilisée pour décrire la variation de la vitesse avec la taille des particules :

$$v = \frac{c}{\sqrt{d_p}} \quad (\text{IV.17})$$

Le paramètre c a été ajusté aux données expérimentales. La relation théorique taille-vitesse ainsi produite est montrée en fig. IV.24, avec les données expérimentales. L'écart entre les mesures et la vitesse théorique, très grand, peut être expliqué de différentes façons. D'abord, une erreur intrinsèque au procédé de mesure par images est présente : la taille des particules est mesurée, comme en figure II.6, par voie optique sur la projection 2D de la particule et ne représente donc pas la taille réelle des particules. Toute information concernant la troisième dimension (la profondeur) et, par conséquent, le vrai volume est perdue. Ensuite, de nombreux facteurs autres que la taille peuvent influencer la vitesse

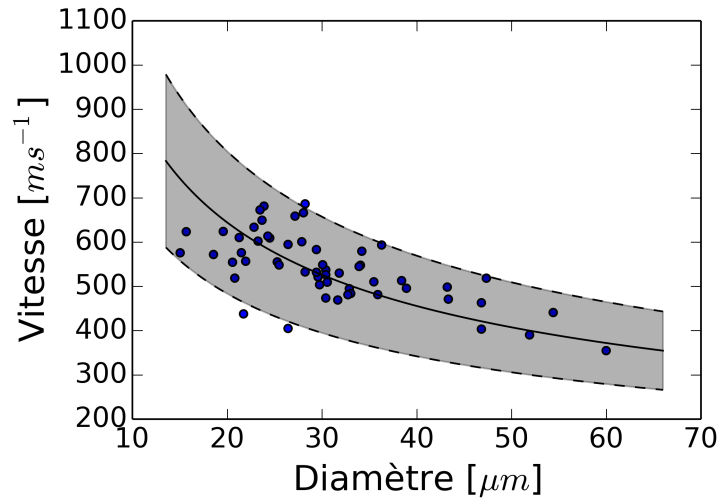


FIGURE IV.24 – Résultats des mesures de taille/vitesse des particules en vol. Les points sont les mesures expérimentales, les trois courbes sont issues de l’ajustement aux données expérimentales de la relation taille-vitesse de l’eq. IV.6 (optimum et intervalle de confiance à 95%).

d’une particule donnée : la forme (qui affecte le coefficient de traînée), l’interaction en vol avec d’autres particules, avec les parois de la buse et avec l’arc de choc et, finalement, la position de la particule, au centre ou en périphérie du jet. La grande dispersion des données a été interprétée comme normale, vu le nombre de facteurs intervenants.

IV.7 Estimation des paramètres de frottement

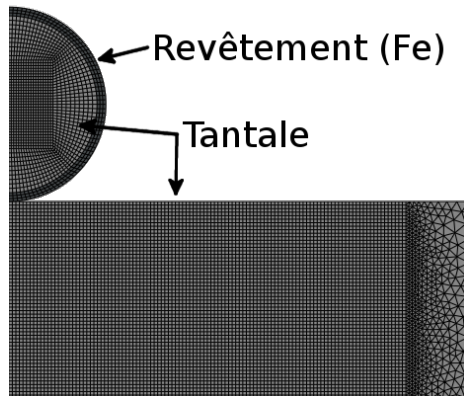


FIGURE IV.25 – Etat initial pour les simulations d’impact de la poudre revêtue. Ici la configuration « Ta sur Ta » est montrée, mais les impacts « Ta sur Cu » ont été aussi simulés.

Le revêtement des particules de la poudre par un dépôt de fer (voir le chapitre 2 pour une description du procédé) a été conçue dans le but de créer une couche de contraste pour l’observation par MTX des splats Ta sur Ta (cf. chapitre VI). Vu la petite quantité de poudre revêtue disponible, seules deux projections ont été effectuées, sur deux substrats différents : un de tantalum cold spray poli, l’autre de cuivre poli. Le premier, destiné exclusivement à la MTX, a été observé au MEB sans préparation et a donné les images des splats « Ta revêtu Fe sur Ta ». Le deuxième échantillon, sur substrat en cuivre, a été

produit dans le but d'étudier l'effet à l'impact de l'enrobage. De plus, la couche en fer déposée en surface des particules pourrait être utilisée comme marqueur et fournir des informations intéressantes sur les phénomènes (le frottement, en particulier) liés à l'écrasement et d'accès expérimentale difficile. L'espoir est de pouvoir tirer quelques conclusions sur le comportement plastique de la zone proche de l'interface, fortement influencé par le frottement. Ce dernier est inclus dans les simulations EF en tant que modèle de Coulomb modifié, qui compte deux paramètres : le coefficient de frottement et le cisaillement critique $\bar{\tau}_{\max}$ (cf. § IV.5.3). Le premier est considéré, d'après l'étude bibliographique, comme ayant un effet mineur. Le deuxième, en revanche, a été démontré influencer la forme finale du splat. Les deux paramètres ne peuvent pas être déterminés dans les conditions dynamiques du procédé cold spray. Une approche indirecte a, donc, été essayée, ayant recours à la simulation par EF.

Paramètre	Symbole	Fer	Unité
Densité	ρ	7,85	$g\,cm^{-3}$
Mod. de cisaillement	μ	82,0	GPa
Param. JC	A	175	MPa
Param. JC	B	308	MPa
Param. JC	C	0,06	-
Param. JC	n	0,32	-
Param. JC	m	0,55	-
Param. JC	$\dot{\epsilon}_0$	1	-
Param. EOS	c_0	3574	$m\,s^{-1}$
Param. EOS	s	1,725	-
Param. EOS	Γ_0	1,69	-
Temp. de fusion	T_m	1811	K
Coeff. capac. therm.	c_V	440	$J\,K^{-1}\,Kg^{-1}$
Coeff. conduc. therm.	k	80,2	$W\,m^{-1}\,K^{-1}$

TABLEAU IV.3 – Paramètres du fer, extraits de [64] pour le paramètres JC et de [65] pour les paramètres EOS.

Les observations expérimentales des splats (de tantale enrobé en fer et projetés sur cuivre) sont comparées aux simulations d'impact des particules revêtues. Dans ces dernières, une particule sphérique revêtue de fer s'écrase, en 2D, sur un substrat en cuivre. Le revêtement est crée en assignant le matériau « fer » aux éléments les plus externes de la sphère. Ceux-ci mesurent $1\,\mu m$ dans la direction radiale et déterminent l'épaisseur de la couche. De cette façon, une adhérence parfaite entre la particule et son revêtement a été obtenue.

Différentes valeurs de $\bar{\tau}_{\max}$ ont été essayées : 10, 20, 50, 100, 200, 500 et 1000 MPa.

Les paramètres utilisés pour le fer sont donné dans le tableau IV.3 et l'état initial du calcul est montré en fig. IV.25.

La figure IV.26, à gauche, illustre les états finaux des simulations pour les valeurs de $\bar{\tau}_{\max}$ de 10, 100 et 1000 MPa. Les figures à droite, représentent les nœuds du calcul EF, extraits des simulations pour effectuer la mesure du profil d'épaisseur de la couche, le long de la surface de la particule. A cette fin, deux séries des nœuds sont utilisées : ceux de la surface externe (\mathcal{M}_{ex}) et ceux de l'interface particule-revêtement (\mathcal{M}_{in}). Les deux ensembles sont définis à l'état initial et, pourvus d'un point d'origine et d'un point d'arrivée, définissent deux chemins (ensembles ordonnés de nœuds). Le plus externe (\mathcal{M}_{ex}) est illustré en fig. IV.27 (a), à l'état initial. Les deux ensembles de nœuds, à l'état final après impact, sont densifiés par interpolation (utilisant des « B-splines »), avant d'être utilisés

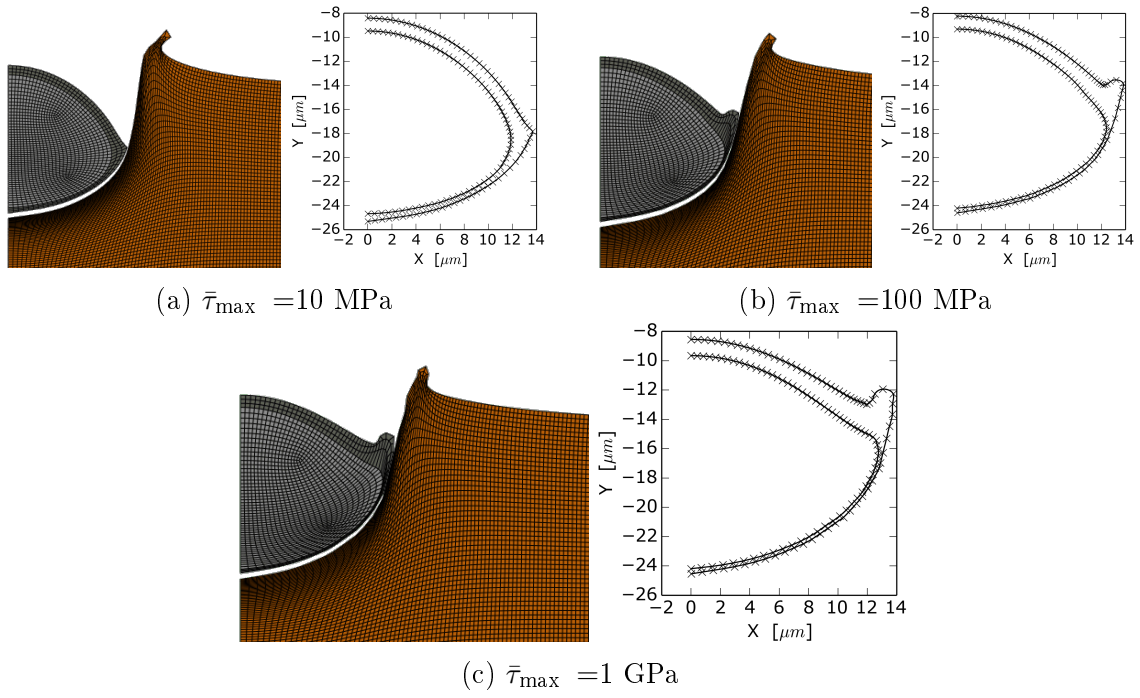


FIGURE IV.26 – Etats finaux des simulations d’impact de poudre revêtue sur cuivre pour différents valeurs du cisaillement critique $\bar{\tau}_{\max}$.

pour la détermination de l’épaisseur. Cela permet d’augmenter la résolution spatiale et de limiter les erreurs dans la mesure. Fixé un point de \mathcal{M}_{in} , l’ensemble des \mathcal{M}_{ex} est parcouru pour déterminer le point le plus proche. Leur distance représente une mesure locale de l’épaisseur de la couche. La répétition de la mesure pour chaque point de \mathcal{M}_{in} permet, enfin, de tracer les courbes de fig. IV.27 (b) et (c), qui montrent, respectivement pour impact sur cuivre et sur tantale, l’épaisseur de la couche en fer le long du chemin surfacique après déformation. A l’état initial, l’épaisseur était uniforme et égale à $1 \mu\text{m}$. Après déformation, la partie inférieure de la couche (du côté du substrat) en résulte amincie. La matière est déplacée plus loin sur le même chemin et s’accumule aux alentours du point à courbure maximale. Cet effet est mis en évidence par les courbes de fig. IV.27 (b). Les pics correspondent, en fait, à des zones d’accumulation de matière (épaisseur maximale). Ce comportement est accentué par des valeurs de $\bar{\tau}_{\max}$ élevées. On observe une transition assez abrupte dans la hauteur du pic et sa position, pour des valeurs de $\bar{\tau}_{\max}$ entre 50 et 100 MPa. Pour les résultats sur tantale de fig. IV.27 (c), les mêmes observations restent valides. A différence du cas précédent, la position du pic ne semble pas être affectée par $\bar{\tau}_{\max}$. Cela n’est pas vrai pour la hauteur, qui présente une transition vers des valeurs plus élevées en correspondance de $\bar{\tau}_{\max}$ entre 20 et 50 MPa.

Les observations au MEB en coupe d’un échantillon de splats de Ta enrobés Fe et projetés sur Cu sont montrées en fig. IV.28 (images en électrons rétrodiffusés). La couche de revêtement en fer est bien visible dans les images de détail. La particule a conservé l’aspect rugueux qui la caractérisait avant projection (voir le chapitre VI). L’épaisseur ne peut pas être considérée homogène, car présente des variations sensibles. Au contraire, la continuité même du revêtement est mise par fois en cause (cf. fig. IV.28 en bas à gauche). Il existe toutefois des zones étendues où la couche en fer maintient une certaine homogénéité comme, par exemple en fig. IV.28 en bas à droite.

La comparaison avec les résultats de simulations est difficile. La différence la plus importante est dans la forme des particules, irrégulière dans l’expérience et sphérique pour la simulation. Cela empêche une comparaison directe et quantitative des deux cas. Seules

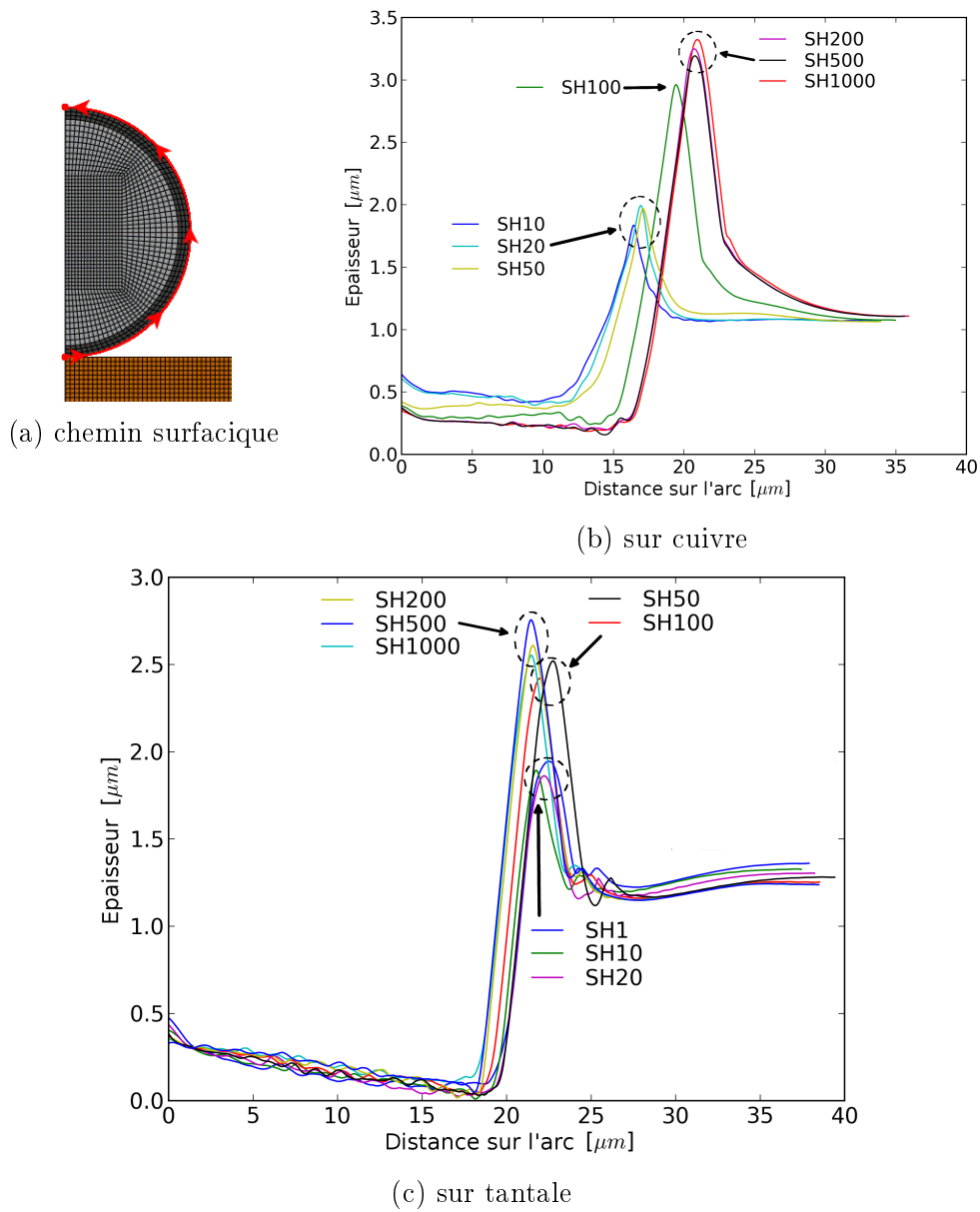


FIGURE IV.27 – Epaisseurs de la couche de fer, mesurées dans les simulations EF le long du chemin illustré à gauche, pour différents valeurs du cisaillement critique $\bar{\tau}_{\max}$. Les valeurs du paramètre, en MPa, sont précédées par les lettres « SH ».

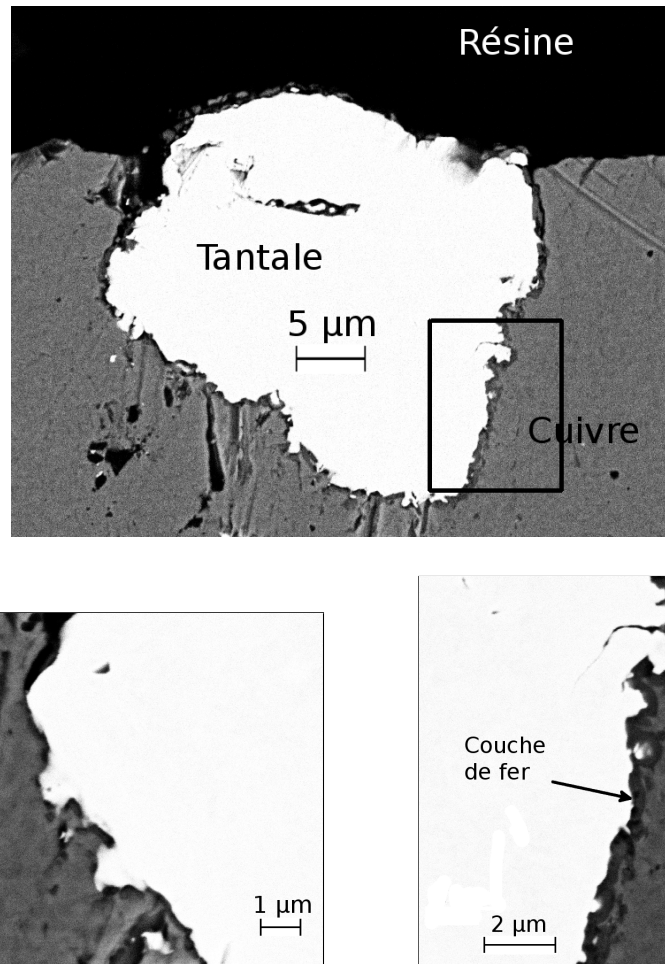


FIGURE IV.28 – Vues au MEB en section d'un splat de tantale revêtu en fer, après impact sur cuivre.

des conclusions partielles, donc, sont possibles. Néanmoins, l'existence de zones presque inaltérées à l'impact, fait penser aux résultats des simulations avec des faibles valeurs de $\bar{\tau}_{\max}$. Pour ce fait et faute d'autre guide dans le choix du paramètre de frottement, dans les simulations suivantes $\bar{\tau}_{\max}$ a été fixée à 50 MPa.

IV.8 Simulation 3D

Dans la suite, l'extension en 3D des modèles par éléments finis précédemment exposés est développée. Elle peut être considérée comme préparatoire à l'application au cas des particules réelles.

IV.8.1 Passage au 3D

En vue des simulations d'impact des particules réelles, un modèle sphérique en 3D a été mis en place. Les mêmes caractéristiques et hypothèses du modèle 2D, détaillées en IV.3, ont été appliquées ici.

IV.8.2 Remaillage

Le remaillageur d'Abaqus ne réalise pas un nouveau maillage mais se contente de translater des nœuds, de façon à ce que le maillage soit plus homogène. Le problème est que,

quand de grandes déformations sont en jeu, des transformations notables dans la forme de l'objet sont possibles et le maillage précédent ne peut pas toujours s'adapter à la nouvelle géométrie. C'est ce qu'a été relevé, par exemple, pour les substrats à faible rugosité (cf. § IV.5.5).

Lors du passage en 3D, des problèmes inattendus ont été rencontrés, liés au remaillage réalisé par Abaqus introduit en partie IV.4.1. Si l'algorithme de remaillage fonctionne de manière satisfaisante en 2D, en 3D il n'est pas applicable à tous les maillages. C'est le cas, par exemple, de la figure IV.29. Ici, une sphère a été maillée par des éléments tétraédriques, avant d'être projetée à 500 ms^{-1} sur un substrat. La simulation est interrompue très tôt par l'apparition d'éléments à volume négatif (imaginons un vertex du tétraèdre traverser le plan formé par les trois autres). Cette erreur s'accompagne d'un message d'avertissement insolite, qui ne s'était jamais présenté auparavant : « abqWarnTooManySurrEl ». L'explication associée au message est que les nœuds surfaciques qui sont connectés à plus de 15 éléments ne sont pas déplacés lors du remaillage. Cette restriction ne s'applique donc qu'à un petit ensemble de nœuds (marqués en rouge en figure IV.29), mais elle est fatale : lors du remaillage certains nœuds sont déplacés et d'autres non. Le résultat est que des éléments, liés au nœuds en question, peuvent s'effondrer ou atteindre des volumes négatifs. La simulation s'arrête là. Il faut remarquer que ce problème n'a pas pu être résolu avec le service clients d'Abaqus et qu'il n'est pas mentionné ni dans la documentation scientifique (qui pourtant fait large utilisation d'Abaqus et de son remaillage adaptatif) ni dans les forums des utilisateurs d'Abaqus.

Dans le cas de cette étude, la seule façon de s'en sortir a été de passer au maillage hexaédrique, caractérisé par une moindre connectivité par rapport au tétraédrique : le nombre de nœuds connectés est toujours inférieur à 15 et le message d'avertissement ne se présente pas.

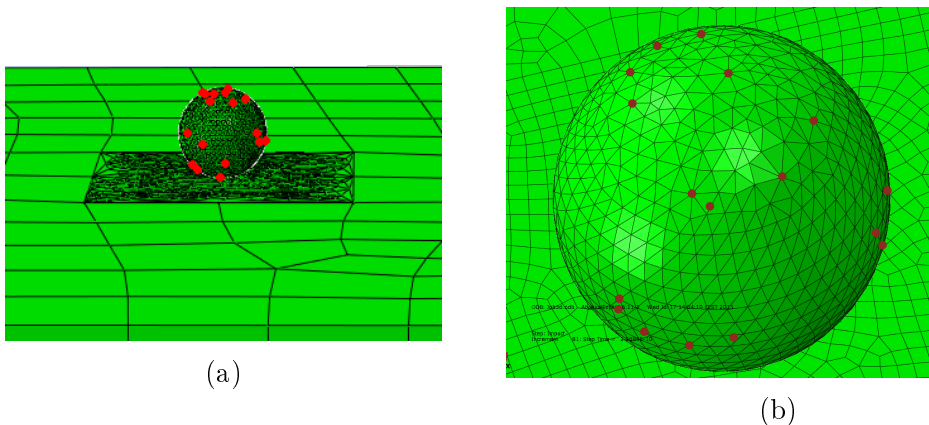


FIGURE IV.29 – Sphère en 3D : en rouge les nœuds qui ne peuvent pas être remaillés. (a) : vue de loin. (b) : détail.

IV.8.3 Simulation des particules réelles

Pour les simulations d'impact de particules réelles, le modèle 3D précédemment mis en place a été utilisé. Les paramètres de remaillage, qui sont, on le rappelle, la fréquence et l'intensité avec lesquelles l'algorithme est appliqué, déterminent souvent la bonne réussite ou non des simulations. Comme déjà dit en § IV.4.5, pour réduire l'impact du remaillage sur le bon déroulement des simulations, le remaillage a été limité à la première phase de l'impact, là où la majorité de la déformation se concentre. A cette fin, l'intervalle temporel de chaque simulation a été divisé en trois étapes (pas). Pour chaque pas, il est

en effet possible de fixer des paramètres de remaillage différents ou même d'arrêter le remaillage. La première étape, caractérisée par un remaillage intense, couvre le temps des grandes déformations. La deuxième, avec un remaillage modéré, occupe la phase finale de la déformation et la troisième, sans remaillage, la phase de relaxation.

IV.8.3.1 Sélection des paramètres expérimentaux

Le procédé CS est assez complexe et est caractérisé par de nombreux paramètres. Le tableau IV.4 présente un résumé des plus importants (à matériaux et équipement de projection fixés). Ces paramètres sont répartis en trois classes hiérarchiques, selon l'influence qui leur a été attribuée sur la microstructure finale du dépôt. Seulement ceux qui ont été considérés comme étant les plus importants (classe 1 dans le tableau) ont été retenus. Les variations de ces paramètres ont été considérées. Elles déterminent le nombre des simulations à réaliser. Dans le tableau, on trouve d'abord la pression et la température du gaz principal (GP dans la suite). Ces deux paramètres déterminent, avec la forme de la buse et la composition du GP (qu'on peut considérer comme fixes et inclure dans les matériaux et équipement), la vitesse du GP. Dans la même catégorie d'importance, on retrouve la géométrie de la poudre. Celle-ci est liée, en premier lieu, à la vitesse d'impact : la taille détermine les propriétés inertielles de la particule et la forme affecte le coefficient de traînée. Ensuite, la forme et l'orientation peuvent radicalement changer le résultat de l'impact, comme montré en partie IV.5.4. Les résultats du chapitre 3 sur la caractérisation 3D de la poudre, trouvent donc ici leur application.

Les autres paramètres, même s'ils ont un rôle important d'un point de vue expérimental, n'ont pas été pris en compte pour les simulations par éléments finis. Par exemple, l'oxydation des poudres joue un rôle primordial pour la formation du dépôt, comme détaillé dans la thèse [45], car elle influence profondément les liaisons inter-particules et la probabilité d'adhésion (ou le taux de rebonds). Néanmoins, elle ne devrait pas avoir un grand effet sur la déformation à l'impact des particules. L'oxydation des poudres pourra être prise en compte dans la simulation d'empilement, en assignant à chaque particule une probabilité de rebond.

Une fois fait le choix des paramètres à rentrer dans l'étude, on peut estimer le nombre des simulations à faire. Si l'on prend 10 particules représentatives, à l'intérieur de chacune des 7 classes de forme du chapitre 3, l'on considère 3 vitesses et 4 orientations pour chacune et 2 types de substrat (cuivre ou tantale), le nombre total des simulations s'élève à $10 \cdot 7 \cdot 3 \cdot 4 \cdot 2 = 1680$.

Paramètre	Hiérarchie
Pression du gaz	1
Température du gaz	1
Géométrie de la poudre	1
Angle buse-substrat	2
Rugosité du substrat	2
Etat d'oxydation des poudres	2
Distance buse-substrat	3
Vitesse buse-substrat	3
Température du substrat	3
Débit de poudre	3

TABLEAU IV.4 – Classification hiérarchique des paramètres du procédé.

IV.8.3.2 Maillage

La nécessité d'utiliser toujours des maillages hexaédriques dans les simulations 3D, pour éviter les problèmes exposés en IV.8.2, a posé un défi : la majorité des méthodes de maillage couramment employés utilise les tétraèdres. La réalisation des maillages hexaédriques n'est pas banale et a requis l'utilisation du nouveau logiciel « Mesh Gems », commercialisé par DISTENE S.A.S., qui permet le remplissage d'un maillage surfacique par des hexaèdres.

Le passage de l'image 3D, issue de la caractérisation de la poudre (voir le chapitre III), au maillage Abaqus se réalise à travers les trois étapes suivantes :

1. Maillage surfacique : l'image binaire 3D de la particule est traitée avec le logiciel AVIZO. D'abord une « isosurface » est créée, ce qui constitue une triangulation de la surface de l'objet. Ensuite, la surface est lissée, pour éliminer l'effet « escalier » provenant des voxels.
2. Remplissage : le maillage surfacique est d'abord converti en « .mesh », pour des questions de compatibilité avec « Mesh Gems ». Ce dernier est utilisé pour réaliser le remplissage volumique par des hexaèdres.
3. Exportation : enfin, le maillage en format « .mesh » doit être traduit dans un « .inp » compatible avec Abaqus, avant d'être importé dans le modèle d'impact.

IV.8.3.3 Résultats

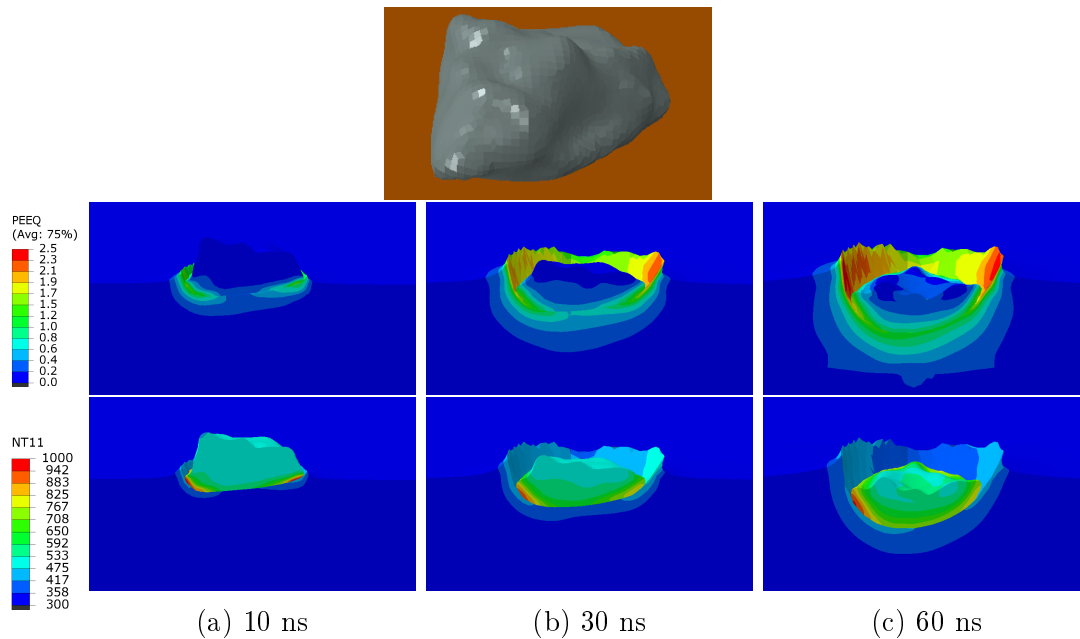


FIGURE IV.30 – Simulations d'impact des particules réelles. En haut, état initial (avant impact). En bas, déformation plastique cumulée et température à différents temps du calcul. Caractéristiques de la particule : classe de forme 5, $Re_q = 4,3 \mu m$, vitesse $627 m s^{-1}$.

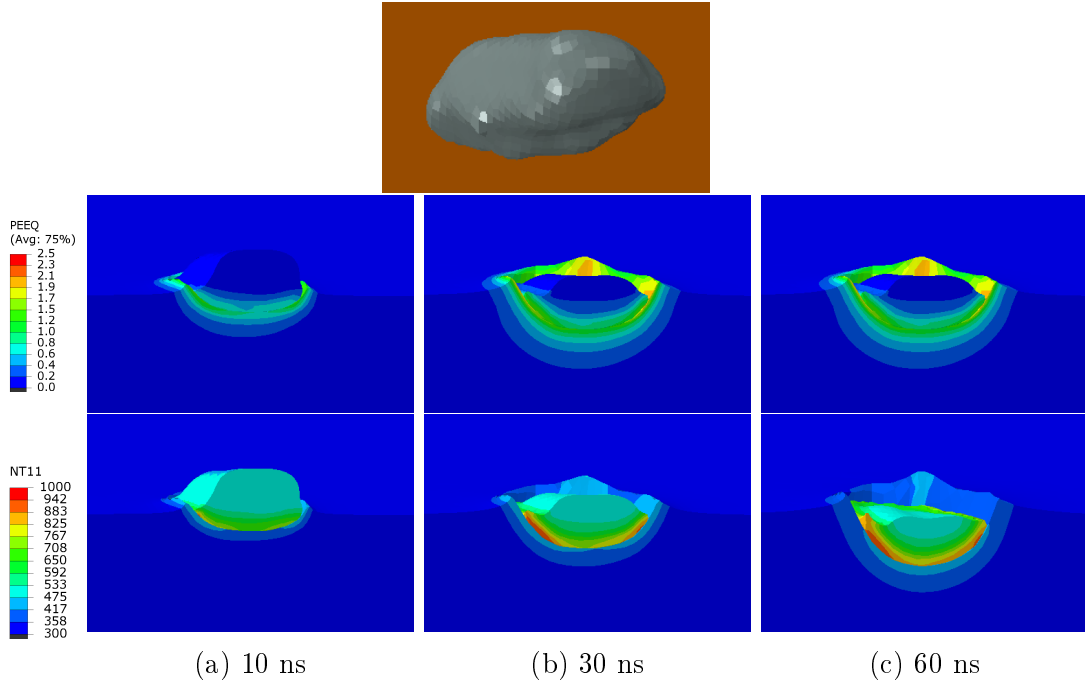


FIGURE IV.31 – Simulations d'impact des particules réelles. En haut, état initial (avant impact). En bas, déformation plastique cumulée et température à différents temps du calcul. Caractéristiques de la particule : classe de forme 6, $Re_q = 7,2 \mu m$, vitesse $548 m s^{-1}$.

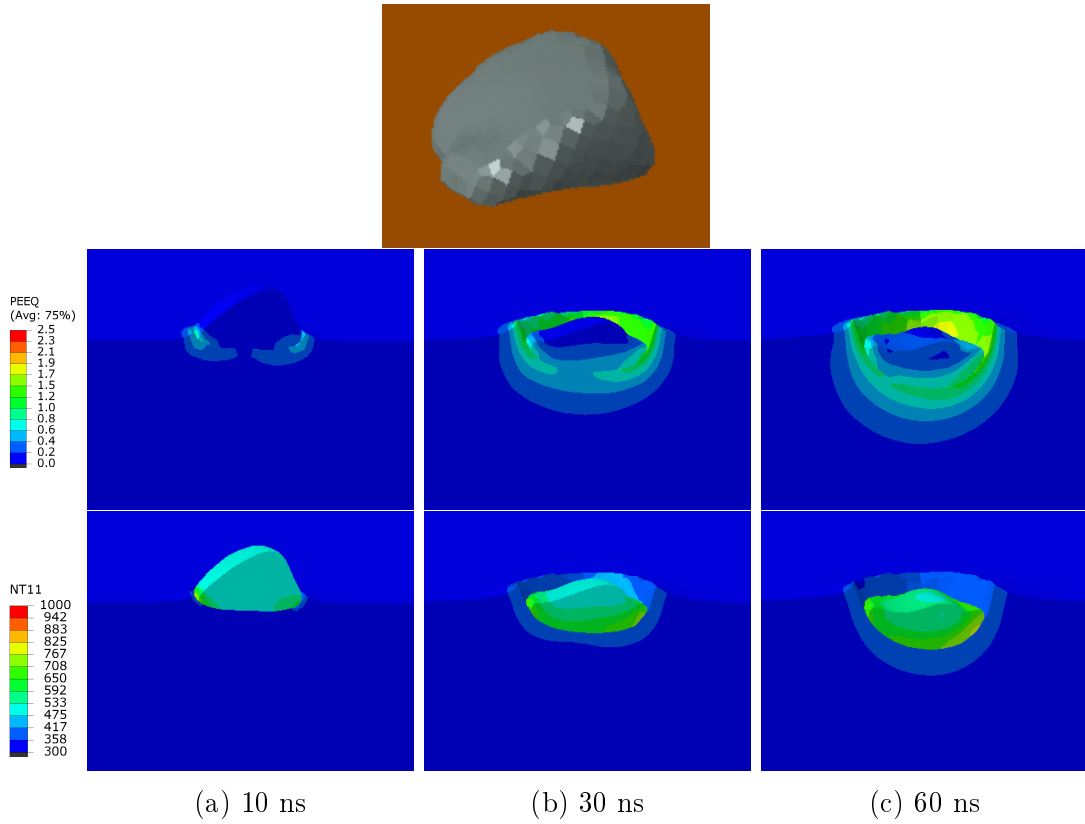


FIGURE IV.32 – Simulations d'impact des particules réelles. En haut, état initial (avant impact). En bas, déformation plastique cumulée et température à différents temps du calcul. Caractéristiques de la particule : classe de forme 5, $Re_q = 4,8 \mu m$, vitesse $584 m s^{-1}$.

Les figures IV.30, IV.31 et IV.32 montrent quelques résultats des simulations d'impact des particules réelles sur un substrat en cuivre. Dans chaque figure, la première image montre la particule entière, à l'état initial ; ensuite, les images contiennent, à différents moments du calcul, la particule coupée par un plan vertical. La déformation plastique équivalente (première ligne) et la température (deuxième ligne) sont représentées en fausses couleurs.

La durée de chaque simulation d'écrasement est variable (de l'ordre des 10^{-7} - 10^{-8} s) et dépend des paramètres du modèle, les plus importants étant le couple des matériaux particule-substrat, la taille, la forme et l'orientation à l'impact de la particule. Il serait tentant d'utiliser un critère énergétique pour déterminer la fin d'une simulation, fondé par exemple sur la variation de l'énergie cinétique qui suit toujours le même type de variation. Cela empêcherait toutefois la division de la simulation en trois parties à différent régime de remaillage (à haute intensité, puis moyenne et, enfin, nulle), qui est capital pour le bon déroulement des calculs. Alternativement, la durée de simulation des particules réelles peut être estimée avant calcul, en utilisant les simulations 2D de disques (cf. V.3). Ces résultats doivent être corrigés pour les effets dus à la forme et à l'orientation des particules, absents en 2D.

La majorité des simulations s'est interrompue en cours d'exécution. Deux causes peuvent en déclencher l'arrêt : une erreur dans le maillage ou une diminution excessive de l'incrément temporel de l'algorithme explicite (cf. IV.4). Dans le premier cas, l'erreur se présente quand un élément (typiquement dans les zones les plus déformées) assume un volume négatif en cours de calcul. Ceci est probablement dû au mauvais comportement du remaillageur d'Abaqus, qui ne change pas la topologie du maillage mais se limite à en déplacer les nœuds. Dans le deuxième cas, selon le mécanisme expliqué en IV.8.2, l'excessive déformation d'un élément (dont le volume reste positif) dans une direction fait diminuer de plusieurs ordres de grandeur l'incrément temporel Δt de l'algorithme explicite et mène ainsi à l'échec du calcul. On dit, en revanche, qu'un calcul est réussi quand il n'est pas interrompu et arrive à sa conclusion.

Pour chacune des 1680 simulations, différentes combinaisons des paramètres de remaillage (fréquence f et intensité ν) ont été essayées, pour la première et à la deuxième partie de la simulation (à haute et moyenne intensités de remaillage). Cela fait donc quatre paramètres (f_1 , ν_1 , f_2 et ν_2) à fixer pour chaque tentative. Le tableau IV.5 résume les nombres des simulations réussies, en fonction des paramètres de remaillage. Malgré le nombre élevé des échecs, sur les 1680 simulations d'impact de particules réelles environ 200 ont été menées à bien.

La figure IV.33 montre un bilan des simulations réussies en fonction des différentes variables considérées. (a) illustre l'effet de la classe de forme de la particule. Certaines classes présentent un nombre de réussites très faible, voire nul, tandis que trois classes sur sept représentent plus de 90 % des réussites totales. Cela signifie qu'une certaine corrélation existe entre la forme de la particule et la réussite de la simulation EF. (b) montre l'influence du matériau du substrat. La fraction des réussites est bien supérieure pour le tantale que pour le cuivre, probablement à cause d'une déformation du substrat limitée dans le premier cas. (c) présente l'effet de la vitesse. Comme on pouvait s'y attendre, plus la vitesse est élevée, plus la fraction d'échecs augmente, encore à cause d'une déformation plus forte. Enfin, (d) montre que l'orientation n'a aucune influence statistique sur la réussite des simulations.

Le nombre réduit de réussites exprime un manque de robustesse des simulations EF. Pour une simulation donnée, il est possible d'intervenir sur plusieurs variables, jusqu'à trouver la bonne combinaison qui va mener le calcul à bien. De nombreux essais, en changeant les paramètres de remaillage, les durées des étapes des simulations et le maillage

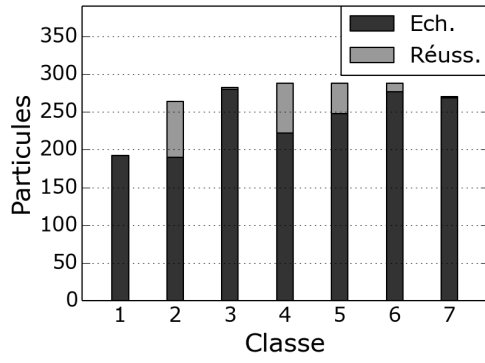
f_1	ν_1	f_2	ν_2	No. réussies
20	1	100	1	6
10	1	100	1	2
5	1	50	1	1
1	1	50	1	15
1	2	1	50	4
1	5	1	30	17
1	7	1	30	2
1	10	1	30	14
1	12	1	30	4
1	15	1	50	25
1	17	1	20	5
1	20	1	30	18
1	25	1	30	15
1	22	1	20	4
1	27	1	20	3
1	30	1	30	20
1	32	1	10	1
1	35	1	30	13
1	40	1	30	10
1	42	1	10	1
1	50	1	10	2
1	60	1	10	4
1	70	1	10	2
1	100	1	10	6

TABLEAU IV.5 – Nombre des simulations réussies, par couple de paramètres de remaillage essayés.

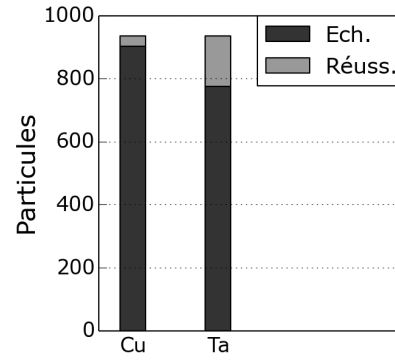
(plus ou moins dense), sont souvent nécessaires avant de parvenir à une réussite.

Quand le nombre de simulations à faire est élevé, en revanche, la recherche des bons paramètres doit être automatisée. Si les essais sur les paramètres de remaillage sont relativement simples, quoi que coûteux en nombre de calculs, le maillage n'as pas pu être changé.

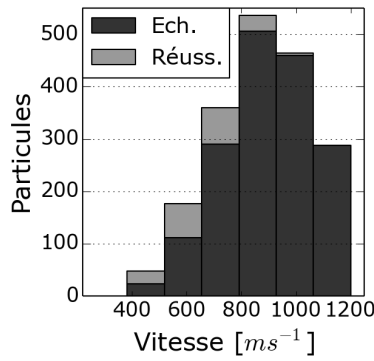
Les causes du manque de robustesse des simulations EF sont à chercher probablement dans l'outil de remaillage ALE d'Abaqus et dans l'approche de type lagrangien choisi, qui se sont révélés très sensibles au choix du maillage et des paramètres de remaillage. Pour augmenter les possibilités de réussite, l'algorithme de remaillage ne devrait pas être limité à la seule translation des nœuds, mais devrait permettre le changement de topologie et accomplir ainsi un remaillage complet.



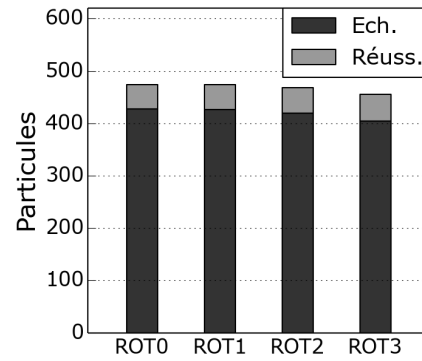
(a) Classes



(b) Matériaux



(c) Vitesses



(d) Orientations

FIGURE IV.33 – Bilan des simulations réussies, classées par différentes variables.

IV.9 Conclusions

La simulation d'écrasement des particules a été mise en place. Le logiciel Abaqus (approche lagrangienne) a été utilisé pour les calculs thermomécaniques en éléments finis.

Des simulations en 2D, avec des particules idéalisées (sphériques ou elliptiques), ont permis l'évaluation des effets de certaines variables, relatives à la simulation (taille et densité du maillage) et au procédé (forme et vitesse des poudres, rugosité du substrat).

L'écoulement et le frottement ont fait l'objet de deux études particulières qui ont porté à leur estimation. Le premier est à la base des simulations d'impact sur substrat en « tantale cold spray », pour représenter les impacts sur des particules déjà déposées. L'étude sur le frottement, bien que manquant de conclusions tranchantes, semble pencher vers des faibles valeurs de $\bar{\tau}_{\max}$.

Le modèle en 2D a été étendu en 3D. L'utilisation d'outils spécifiques de maillage a permis, enfin, l'« importation » des particules réelles (en provenance de la bibliothèque 3D du chapitre III) dans Abaqus et la simulation de leur écrasement.

L'automatisation de ces dernières simulations visait la possibilité d'en faire en grand nombre. Face à des problèmes de robustesse des calculs, le nombre de simulations menées à bien s'est trouvé limité.

Chapitre V

Modèle d'empilement

V.1 Introduction

Dans le chapitre 1 un aperçu de l'état de l'art sur la simulation d'empilements a été donné. Si quelques tentatives de modélisation avec des bases physiques existent pour d'autres procédés étudiés depuis longtemps, comme la projection plasma, ce n'est pas le cas pour le cold spray.

Dans ce chapitre, seront jetées les bases d'un nouveau type de simulation d'empilements pour le procédé cold spray. La construction d'un dépôt cold spray peut être modélisée par un procédé itératif, où les particules s'écrasent une à une sur un substrat. Si cela est fait avec la connaissance de la forme des particules et de leur comportement à l'impact, l'observation et la physique sont introduites dans un domaine tel que la simulation d'empilements en cold spray. Jusqu'à aujourd'hui, l'empirisme et la phénoménologie étaient encore à la base de toute tentative. Les résultats des simulations d'impact EF (cf. chapitre IV) sont, donc, utilisés ici pour modéliser la projection d'un nombre quelconque de particules.

La simulation d'empilements se fait itérativement : les particules sont déposées l'une après l'autre. Dans le temps idéalement dilaté de la simulation d'empilements, des impacts simultanés n'ont pas lieu. Cette hypothèse est une condition nécessaire à l'utilisation des simulations EF d'impact.

La prédiction de la microstructure, entendue comme composition du dépôt en splats, est donc le but final de cette modélisation d'empilement.

V.2 Homogénéité du dépôt

Lors que l'on aborde la simulation du dépôt, une des premières questions à se poser concerne son homogénéité. Expérimentalement, la montée en épaisseur se fait par passes successives de la buse, le dépôt se formant donc, ainsi, couche après couche. Si le procédé est stationnaire, c'est-à-dire si les conditions d'impact sont les mêmes à chaque passe, on peut s'attendre à ce que le dépôt soit homogène, à l'exclusion des premières couches (proches du substrat en cuivre) et des dernières (proches de la surface du dépôt). Les premières particules sont en effet déposées sur un matériau qui leur est différent. Les dernières, en revanche, ne subissent pas l'effet densifiant des impacts successifs.

L'influence du cuivre devrait se limiter aux premières couches. Pour ce vérifier, une série de simulations EF a été mise en place. La couche de particules déjà déposées a été idéalisée en simulation par un revêtement en tantale, uniformément réparti à la surface du substrat en cuivre. Une particule de tantale (sphérique, diamètre de $20\text{ }\mu\text{m}$, vitesse de 500 ms^{-1}) vient s'écraser sur ce dépôt. Différentes épaisseurs de la couche en tantale ont

été étudiées : 5, 7, 10, 15 et 20 μm . La figure V.1 montre deux exemples de particules écrasées sur substrat revêtu.

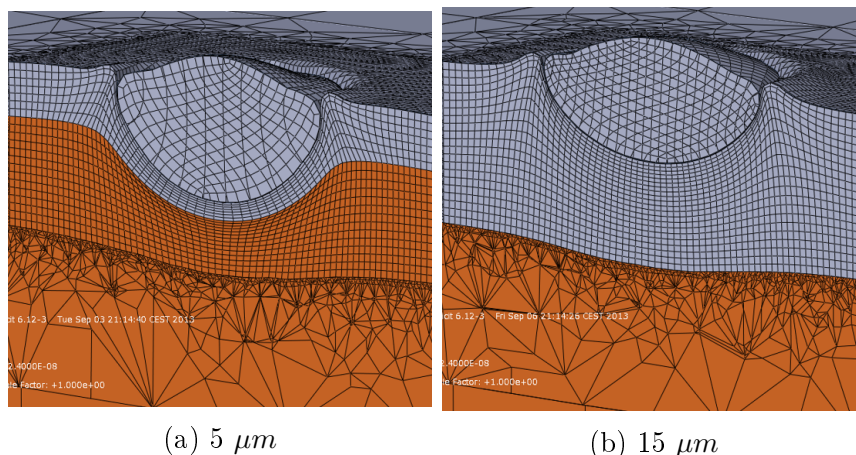


FIGURE V.1 – Etat final des simulations d’impact sur cuivre recouvert d’une couche de tantale de deux épaisseurs différentes ((a) 5 μm et (b) 15 μm).

L’écrasement est mesuré comme la hauteur de la particule divisée par son diamètre maximal. Les résultats sont montrés en fig. V.1, pour différentes épaisseurs de la couche de tantale. Les deux cas extrêmes, désignés par « CU » et « TA » en figure, représentent, respectivement, une couche de 0 μm et un substrat entièrement en tantale.

L’effet de couche est peu visible pour une faible épaisseur. En revanche, pour les grandes épaisseurs ($> 15/20 \mu m$), ladite couche est assimilable à un substrat entièrement en tantale. En conclusion l’influence du cuivre disparaît graduellement, jusqu’à ce que une épaisseur du dépôt de l’ordre de la taille de la particule soit atteinte.

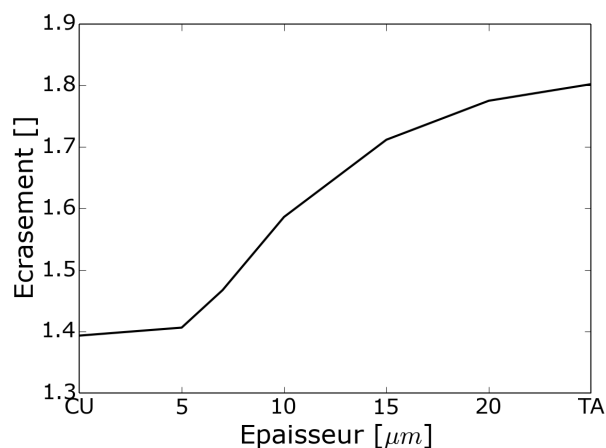


FIGURE V.2 – Ecrasement (H/L) d’une particule sphérique (diamètre de 20 μm et vitesse de 500 ms^{-1}) s’écrasant sur un substrat revêtu. Les cas de référence, CU et TA, représentent un substrat respectivement en cuivre et en tantale.

Le dépôt de Ta sur Cu, montré en fig. V.3, a été élaboré au CEA Le Ripault dans les mêmes conditions de projection que celles utilisées pour les mesures de vitesse de particule (voir chapitre IV), c’est-à-dire 1,6 MPa et 200 °C pour le gaz de projection (hélium). Il ne présente pas d’hétérogénéités visibles. Des mesures de dureté ont été effectuées au sein du même dépôt, afin de vérifier l’homogénéité des propriétés mécaniques. Comme le montre la fig. V.3b, chaque série de mesures est constituée de six points alignés verticalement et distants de 70 μm l’un de l’autre. Dix séries de mesures ont été effectuées au total.

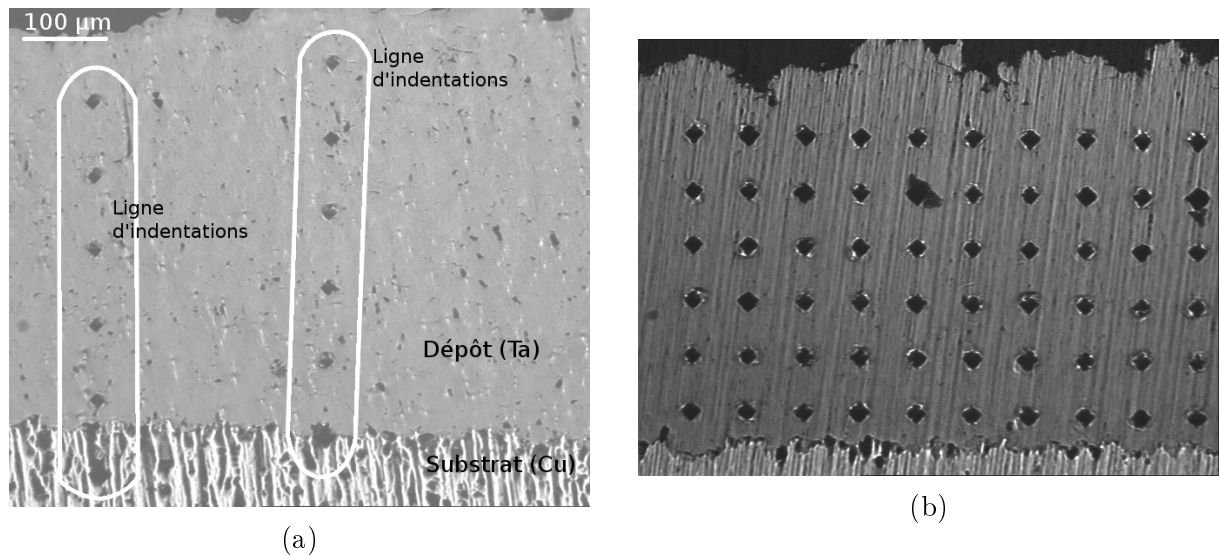


FIGURE V.3 – Image au microscope optique en coupe d'un dépôt de tantale sur cuivre, après indentation. (a) : essai préliminaire, les deux lignes ne sont pas parallèles et les points d'indentation ne sont pas à la même distance de l'interface dépôt-substrat. (b) : ensemble des points d'indentation utilisés pour caractériser le profil de dureté du dépôt (cf. fig. V.4).

L'analyse des résultats consiste à calculer la moyenne et l'écart type pour les dix points (un par série de mesures) équidistants de l'interface. De cette façon, la courbe dureté-distance à l'interface, montrée en fig. V.4, a été obtenue. Toutes les mesures sont à l'intérieur de l'intervalle de confiance, sauf la plus haute (à 0,3 mm du substrat), située juste en dehors. Ce fait pourrait être une indication, aussi faible soit-elle, d'un changement des propriétés du dépôt en proximité de la surface, comme expliqué plus haut.

En conclusion, les mesures de dureté confirment la validité de l'hypothèse d'homogénéité du dépôt, du moins dans sa zone centrale, loin du substrat et de l'interface. Pour pouvoir quantifier la distance à laquelle les propriétés du dépôt deviennent homogènes, d'autres mesures plus précises seraient nécessaires.

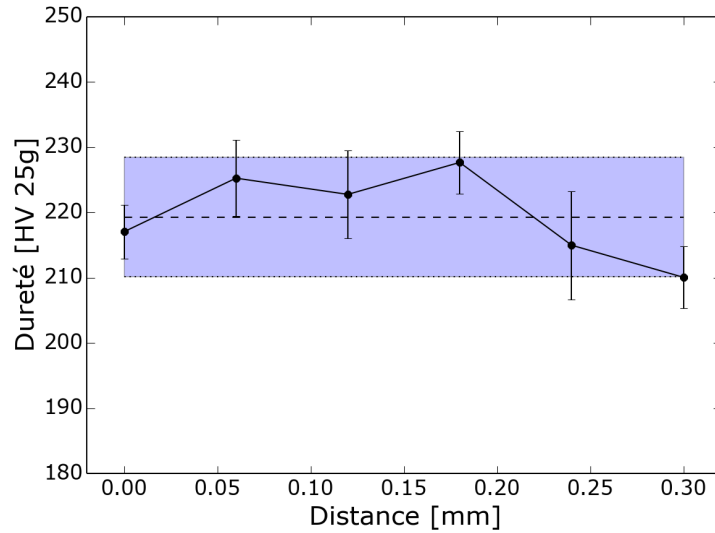


FIGURE V.4 – Profil de dureté d'un dépôt de tantale sur cuivre, en fonction de la distance à l'interface substrat-dépôt. La courbe en pointillé est la moyenne pondérée (219 ± 4.7 HV 25g) et la bande grise représente l'intervalle de confiance à 95% supposant une distribution gaussienne.

V.3 Simulations

En vue de la mise en place du modèle d'empilement, qui occupe le prochain chapitre, une série de simulations d'impact 2D de disques a été effectuée. Différentes combinaisons de tailles et vitesses ont été essayées, comme montré dans le tableaux V.1. Pour chaque taille, trois vitesses ont été choisies sur la base des mesures effectuées (cf. IV.6). Les données expérimentales étant limitées à des tailles majeures de $20 \mu m$, des vitesses fixes ($600, 700$ et 800 ms^{-1}) ont été assignées aux particules ayant un rayon $\leq 15 \mu m$.

Diamètre [μm]	Vitesses [ms^{-1}]
2	600, 700, 800
5	600, 700, 800
7	600, 700, 800
10	600, 700, 800
15	600, 700, 800
20	580, 657, 734
30	473, 536, 599
40	410, 464, 519
50	367, 415, 464

TABLEAU V.1 – Simulations 2D par éléments finis de particules sphériques.

V.4 Modèle d'empilement I

Dans cette partie, les fondements d'un modèle d'empilement, qui soit fondé sur des bases physiques et non pas entièrement phénoménologique, sont jetées. La construction du dépôt cold spray est simulée dans un processus itératif où le particules s'écrasent, une par une, sur le substrat. Les impacts sont donc indépendants les uns des autres. C'est

une condition nécessaire à l'utilisation des simulations EF d'impact où une particule individuelle s'écrase.

Le modèle a été mis en place en 2D, pour simplifier son implémentation. Les données d'entrée, par conséquent, résultent de la série de simulations d'impact en 2D de disques (cf. § V.3).

V.4.1 Modèle à déplacements verticaux

Ce premier modèle, qui servira de base pour des développements ultérieurs, est fondé sur une forte simplification : comme le suggère son nom, les déplacements horizontaux de la matière sont négligés en faveur des verticaux. Cela permet de faire abstraction d'un certain nombre de problèmes présentés plus tard (cf. § V.5).

L'apport des simulations EF se limite, dans ce premier modèle, à deux données : le profil du substrat ($f(x)$) et l'épaisseur de la particule ($e(x)$). Les deux doivent être donnés sous forme de « applications » (dans le sens mathématique, relation entre deux ensembles pour laquelle chaque élément du premier est relié à un unique élément du second) de la coordonnée spatiale x (horizontale, parallèle à la surface du substrat). Le traitement des simulations EF est compliqué du fait que, dans certains cas, la matière est expulsée sous forme de jet. Le repli de la matière sur elle-même empêche d'exprimer le profil sous forme d'application. Un traitement préliminaire des simulations EF est, donc, nécessaire pour éliminer les jets. Cela est montré en fig. V.5.

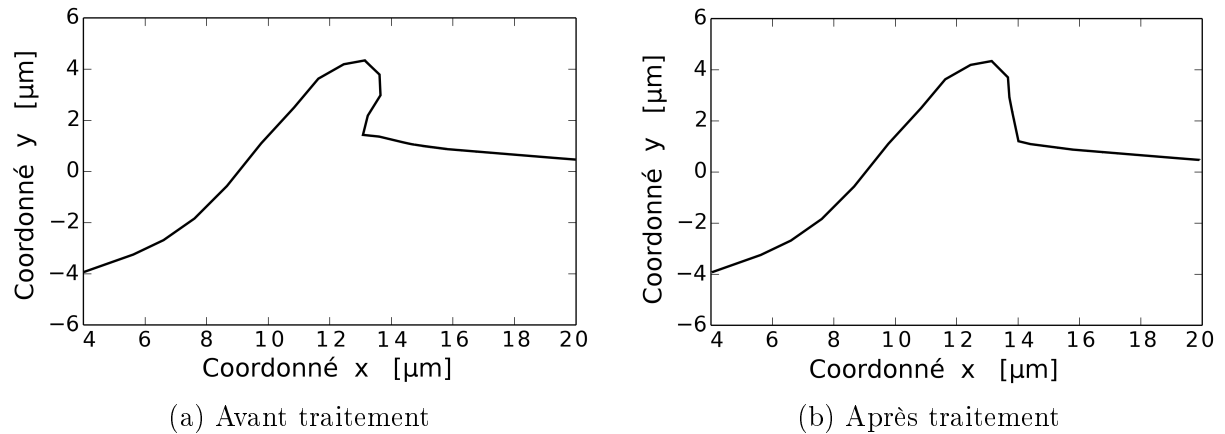


FIGURE V.5 – Traitement préliminaire des données EF : repli de matière (jet).

Le domaine choisi pour le modèle d'empilement consiste en un rectangle discrétisé par une grille régulière. Une image 2D est donc parfaitement adaptée pour représenter ce domaine. La taille du rectangle et le choix de la résolution (en pixels/ μm) déterminent le nombre de pixels et, par conséquent, le poids en mémoire et en temps de calcul de la simulation. Une introduction synthétique aux images labellisées est donnée au chapitre 2. Chaque pixel contient l'information d'appartenance à une partie déterminée du système (une particule donnée, le substrat ou le vide), sous forme de nombre entier (le « label »). Cela permet de maintenir l'individualité des particules au sein du dépôt. Chaque particule peut, de ce fait, être extraite à tout moment du dépôt. La connaissance de l'ensemble des particules constituant le dépôt permet, ainsi, de décrire sa microstructure par sa composition en splats. Toute caractéristique de taille inférieure, c'est-à-dire à l'intérieur des splats (par exemple la structure des grains d'une particule), est négligée.

La taille du domaine de simulation et la résolution sont choisies en fonction des tailles des particules projetées (cf. V.1). D'abord, le domaine doit être assez étendu pour contenir un grand nombre de particules et assurer ainsi la représentativité de la simulation. La

taille du domaine a été donc choisie plus élevée (d'un ordre de grandeur au moins) que la taille de la particule la plus grande. Une fois fixées les dimensions du domaine, la résolution détermine le nombre de pixels utilisés donc le niveau de détail de la simulation, la mémoire et le temps de calcul consommé. Le nombre de pixels est proportionnel au carré de la résolution.

L'état initial de la simulation correspond au couple substrat (plat) - vide. Ces deux domaines sont représentés respectivement en rouge et en blanc dans les images des résultats de fig. V.6. Les particules sont ajoutées l'une après l'autre, de façon itérative, avec l'algorithme suivant :

1. Détermination de la taille et de la vitesse de la particule incidente, tirées au hasard parmi les possibilités montrées dans le tableau V.1). L'abscisse d'impact (x_{imp}) est, pareillement, tirée au hasard.
2. Chargement et adaptation des données de déformation : le profil du substrat $f(x)$ et l'épaisseur de la particule $e(x)$ sont chargées. Dans les simulations d'impact, la coordonnée d'impact correspond toujours à l'origine du système de coordonnées (point de premier contact entre particule et substrat). Les fonctions $f(x)$ et $e(x)$ doivent donc être centrées sur x_{imp} pour être utilisées dans la simulation d'empilements. Cela peut être obtenu en utilisant la coordonnée $x' = x - x_{\text{imp}}$.
3. Application de la déformation calculée par EF à la surface libre. Chaque colonne de pixels, ayant le même x , est translatée verticalement de $f(x')$.
4. Addition de la particule écrasée, sur x_{imp} . Un nouveau label est donné aux pixels compris entre $f(x')$ et $f(x') + e(x')$.

Le modèle a été implémenté entièrement en Python, à l'aide des bibliothèques numpy, scipy et du déjà mentionné SMIL (Simple Morphological Image Library) développé par M. Faessel au CMM.

V.4.2 Résultats des simulations à déplacements verticaux

La figure V.6 montre quelques résultats du modèle d'empilement simplifié. Etant en 2D, les simulations représentent des sections d'un dépôt en cours de formation. Une couleur différente a été assignée à chaque label de l'image donc à chaque particule du dépôt. Le domaine de simulation mesure $500 \times 200 \mu\text{m}^2$ et la résolution est de $10 \text{ pixel}/\mu\text{m}$. Un nombre croissant de particules a été déposé. Pour des petits nombres, comme illustré en fig. V.6a, les instants initiaux du dépôt sont reproduits. Les premiers impacts sont en majorité sur cuivre et le modèle rend bien ces premiers impacts où rarement les particules se rencontrent.

Lorsque le nombre de particules déposées devient important, comme en fig. V.6c) où 2000 particules ont été déposées, les points faibles du modèle se révèlent : l'interface dépôt-substrat devient excessivement ondulée et les splats, en s'adaptant à cette dernière, suivent le même comportement. Ce résultat était prévisible, car le modèle ne prend en compte que les déplacements verticaux. Au moins deux mécanismes perturbent l'empilement des particules. D'une part, à chaque impact, les déformations se transmettent de la surface libre à la colonne entière de pixels. Les déplacements finissent par s'accumuler et les splats s'en trouvent exagérément déformés. D'autre part, dès les premiers impacts, le comportement des particules face à la rugosité du substrat devient visible. Cela est illustré en fig. V.6d qui montre un détail d'une simulation avec $n = 50$. Deux particules, en gris et violet dans le grand cratère à droite, s'écrasent sur une troisième, déjà déposée. Chaque particule incidente s'adapte à la rugosité qu'elle trouve, de façon à ce que les discontinuités présentes avant l'impact soient transmises à la nouvelle surface libre du dépôt.

Les questions présentées ici sont reprises dans le développement d'un modèle plus évolué (cf. § V.6), qui a permis de les résoudre, au moins en partie.

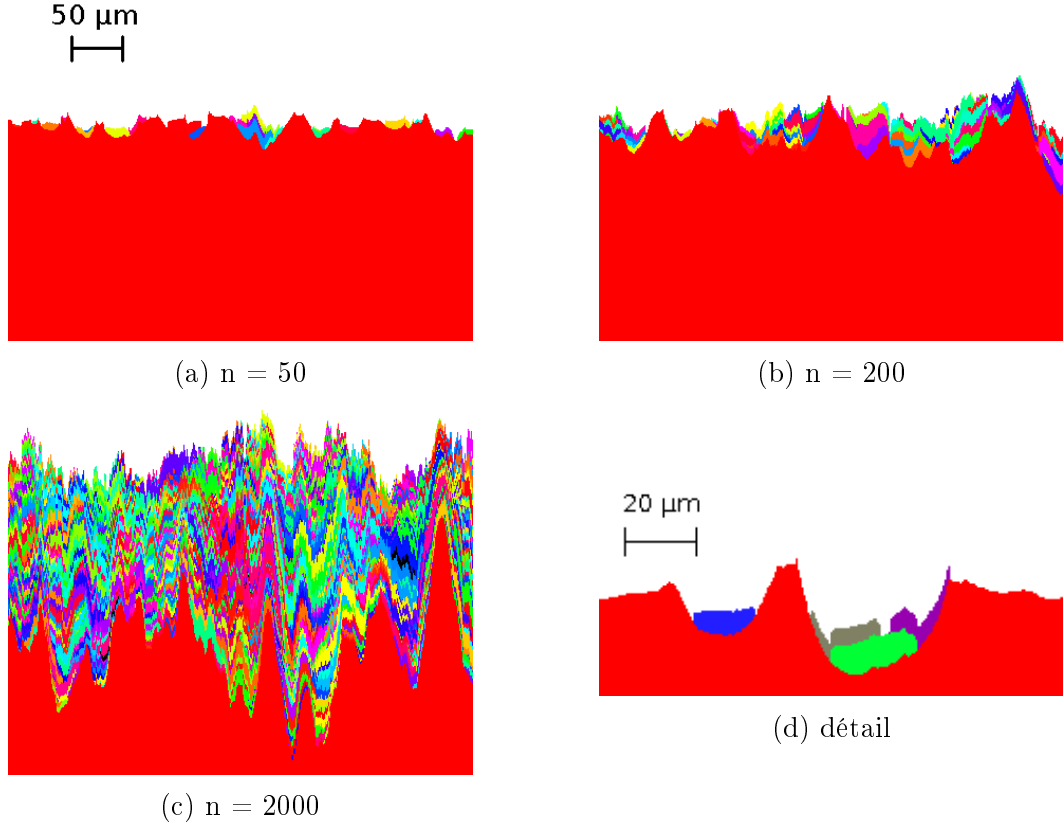


FIGURE V.6 – Résultat des simulations d'empilements à déplacements verticaux, pour différents nombres de particules déposées. Les images représentent des sections d'un dépôt en cours de formation. Une couleur différente a été assignée à chaque particule du dépôt. (Domaine de simulation : $500 \times 200 \mu m^2$. Résolution : $10 \text{ pixel}/\mu m$).

V.5 Utilisation complète des résultats des simulations EF

L'analyse des résultats du premier modèle d'empilement, à déplacements verticaux, a montré les limites de cette approche. En vue d'un modèle plus poussé, qui exploite pleinement les champs de déplacement calculés par EF, il est nécessaire d'extraire des simulations EF le maximum d'informations et de les utiliser correctement. Cette partie est donc consacrée au traitement des données des simulations EF, avec une attention particulière aux méthodes d'interpolation à utiliser pour les champs de déplacement.

V.5.1 Traitement des données en sortie des simulations EF

Comme largement discuté dans le chapitre IV, le remaillage effectué durant les simulations EF efface le lien entre les nœuds du maillage et les points de matière associés. Abaqus offre un outil pour surmonter ce problème, appelé « tracer particles » : un ensemble de nœuds, choisi par l'utilisateur, qui définit les points de matière à suivre pendant la simulation. Une fois le calcul achevé, Abaqus reconstruit l'historique du déplacement des points

de matière sélectionnés, jusqu'à l'état final. Cet outil est utilisé pour obtenir les champs de déplacement de la matière, à la base du modèle d'empilement. La seule limitation est le nombre des points de matière qui peuvent être suivis car l'étape de reconstruction du déplacement devient rapidement couteuse en mémoire et en temps de calcul pour un grand nombre de points. Afin de maintenir un temps de calcul raisonnable, le nombre des degrés de liberté à reconstruire a été limité à 2000 comme conseillé par le manuel d'Abaqus [56]. Cela se traduit dans la possibilité de suivre environ 650 points en 3D et 1000 en 2D. Seuls les champs de déplacement du substrat sont retenus, afin de suivre l'évolution de la microstructure préexistante, c'est-à-dire, des particules déjà déposées. Aucun suivi de matière n'est effectué dans la particule. Cela n'est pas nécessaire, étant donné que la dynamique des grains constituant les particules n'est pas considérée ici.

Ne pouvant pas sélectionner la totalité des nœuds du substrat, qui est de l'ordre de 10^4 , un ensemble restreint a été défini. La densité de nœuds à suivre est plus élevée là où la déformation est plus intense, c'est-à-dire, dans une zone proche du point d'impact de largeur de 2 ou 3 fois d_p et de profondeur de 1.5 ou 2 fois d_p . En dehors de cette zone, les déplacements sont plus faibles et une densité moindre est suffisante. La figure V.7 illustre l'ensemble des points suivis dans le cas d'une simulation 2D. Les positions des points suivis, avant et après impact, y sont représentées. La figure V.8 montre, à différentes étapes de la déformation, les points suivis dans une simulation d'impact.

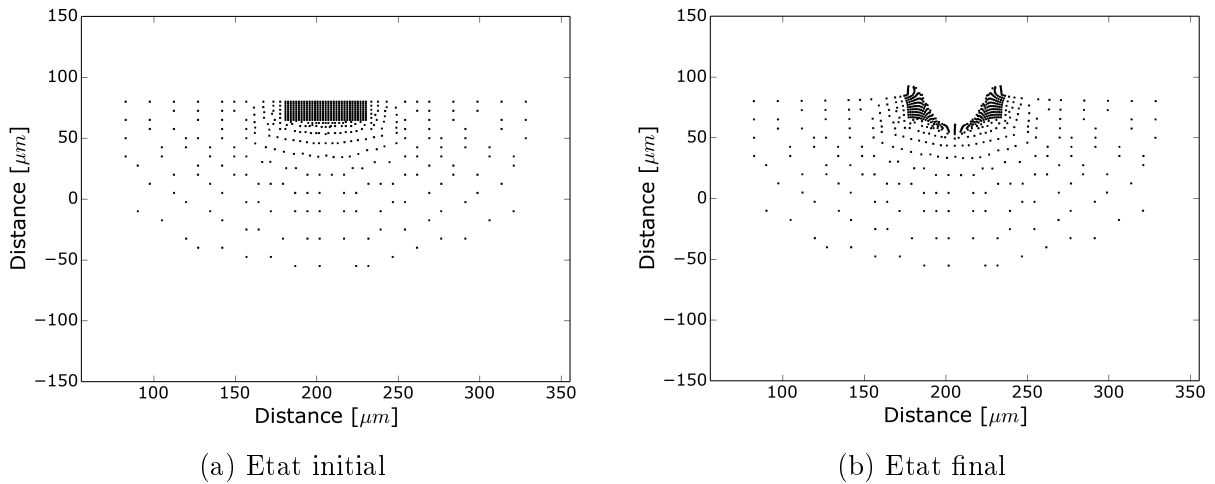


FIGURE V.7 – Données en sortie des calculs par EF : points de matière suivis (pour le substrat seulement).

Une hypothèse de travail est nécessaire : les particules se déposent l'une après l'autre, sans interagir entre elles. Cela permet de négliger les étapes temporelles de déformation des impacts individuels, illustrées en fig. V.8. Il suffit donc de connaître les positions initiales et finales pour associer à chaque impact une déformation du substrat.

Pour résumer, pour chaque simulation d'impact, un champ de déplacement discrétisé est extrait sous forme d'ensemble de points suivis. Il suffit de connaître leur positions initiales et finales pour reconstruire le champ de déplacement discrétisé.

V.5.2 Méthodes d'interpolations

Le déplacements de la matière du substrat, produits par l'impact d'une particule, sont connus seulement pour l'ensemble des points suivis. Pour connaître le déplacement d'autres points, qui ne coïncident pas forcément avec les points suivis, une interpolation des données se révèle nécessaire. En particulier, un champ de déplacement continu peut

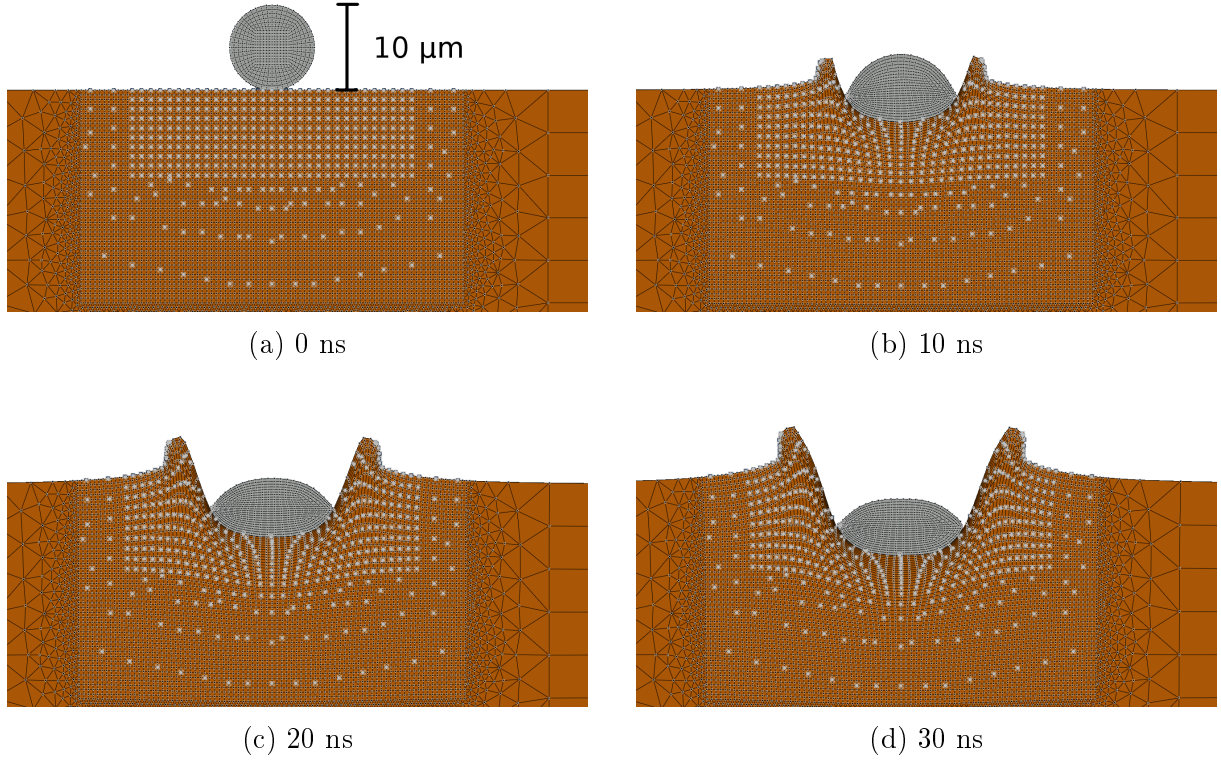


FIGURE V.8 – Evolution temporelle en cours d'impact des points de matière suivis dans le substrat (particule de Ta, diamètre de $10\ \mu\text{m}$, vitesse de $600\ \text{m s}^{-1}$).

être obtenu à l'aide des méthodes d'interpolation, à partir du champ discret des simulations EF. Les deux méthodes essayées sont exposées dans la suite.

V.5.2.1 Interpolation polynomiale

La première méthode tentée est l'interpolation polynomiale. Chaque composante U_α du champ de déplacement peut s'exprimer avec un développement polynomial, limité à l'ordre m , qui prend la forme suivante :

$$U_\alpha = \sum_{i=0}^m \sum_{j=0}^i a_{\alpha,ij} x^{i-j} y^j \quad (\text{V.1})$$

On peut alors imposer le déplacement des n points connus. Pour cela, on dispose dans un espace d -dimensionnel d'un système de $d \cdot n$ équations (une pour chaque point suivi) en $d \cdot (m + 1)$ variables (une pour chaque coefficient du développement polynomial). Si l'on suppose que $m < n - 1$ (les points sont plus nombreux que les coefficients), comme dans le cas présent, le système est surdéterminé. Une solution approchée peut être obtenue par la méthode des moindres carrés.

Différentes valeurs de l'ordre d'interpolation m ont été tentées, dans le cas témoin d'une particule de diamètre $5\ \mu\text{m}$ s'écrasant sur un substrat en cuivre à $500\ \text{m s}^{-1}$. L'ensemble de nœuds suivis est montré en fig. V.7. La méthode des moindres carrés a été utilisée pour déterminer les solutions de l'éq. V.5.2.1 (une pour chaque m). Chaque solution est constituée par l'ensemble des coefficients polynomiaux $\{C_i\}_m$. Les valeurs entières de m jusqu'à 20 ont été essayées. Pour représenter le champ de déplacement polynomial ainsi reconstruit, celui-ci a été appliqué à un domaine d'essai constitué par un carré mesurant $5 \times 5\ \mu\text{m}^2$ (fig. V.10, état initial). Le point d'impact était au centre de la côté supérieure du carré.

Les nœuds de la particule ont également été suivis et la même méthode d'interpolation a été appliquée. Les champs reconstruits ont été appliqués cette fois aux pixels de l'image de la particule initiale, représentée en fig. V.9 a) avec une résolution de $0.075 \mu\text{m}/\text{pixel}$. Même si les données de la particule ne seront pas utilisés dans la suite, leur analyse se révèle instructive pour la méthode d'interpolation à l'étude.

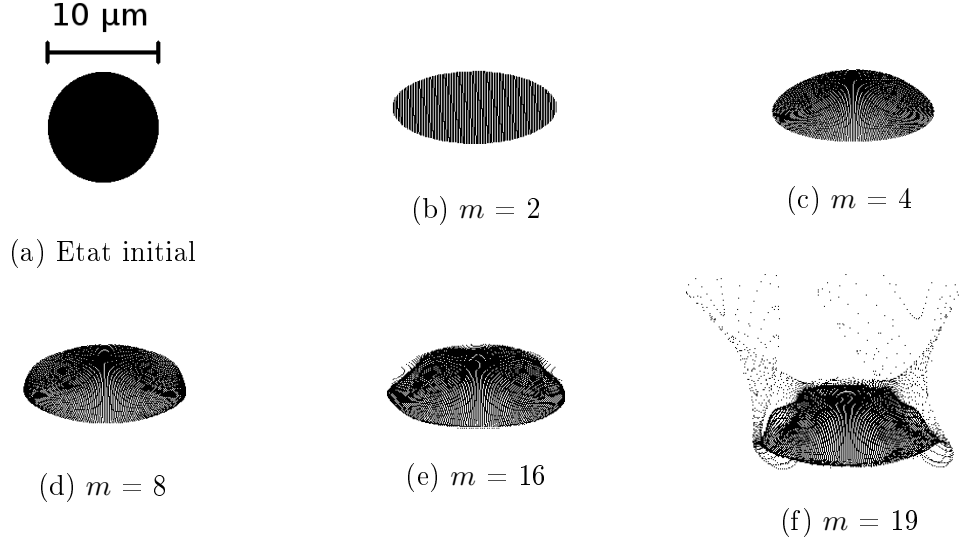


FIGURE V.9 – Interpolation polynomiale des champs de déplacement pour la particule.

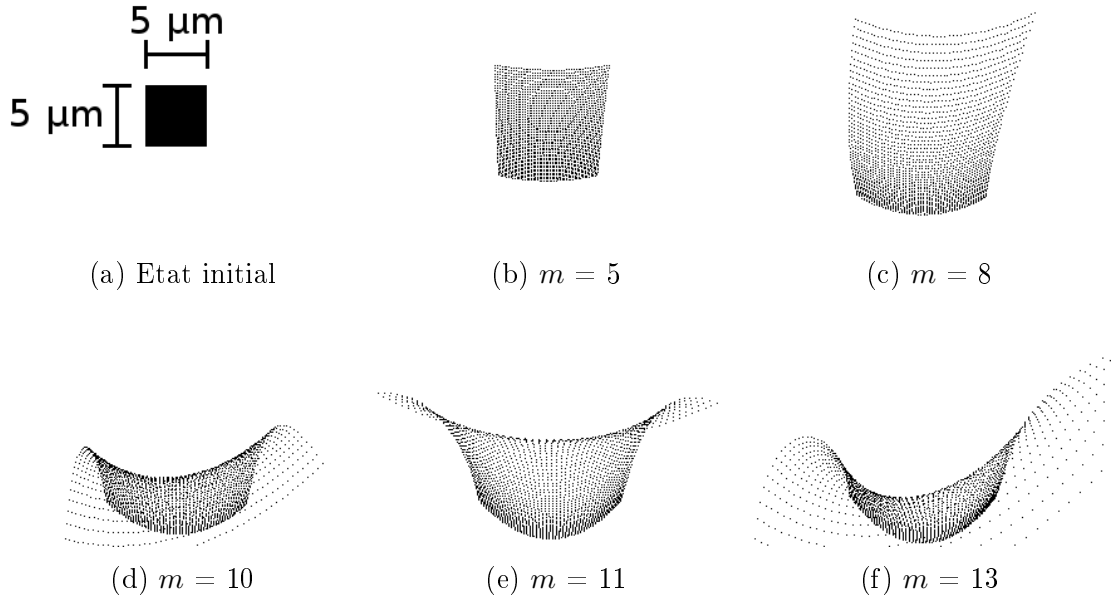


FIGURE V.10 – Interpolation polynomiale des champs de déplacement pour le substrat.

Les domaines avant et après déformation sont présentés, pour quelques valeurs de m , en fig. V.9 et V.10, respectivement pour la particule et le substrat. Pour la particule, des valeurs de m proches de 8 donnent des résultats satisfaisants. En revanche, pour le substrat, aucun ordre d'interpolation semble permettre de reconstruire correctement le champ de déformation. En règle générale, des ordres m d'interpolation trop bas (par rapport au nombre de points connus) ne permettent pas de représenter la complexité des champs. D'autre part, les ordres trop élevés engendrent des problèmes d'instabilité numérique qui faussent les résultats. Cela est bien illustré dans le cas de la particule : l'instabilité commence à apparaître à $m = 16$ et devient vite fatale.

En conclusion, la méthode de développement polynomial n'est pas adaptée à l'interpolation des champs de déformation du substrat ou bien demande l'utilisation de méthodes numériques plus raffinées.

V.5.2.2 Triangulation

Une méthode autre que l'interpolation polynomiale est l'utilisation de la triangulation de Delaunay. Celle-ci est calculée pour les résultats des simulations EF (les points de matière suivis, comme pour l'interpolation polynomiale) dans leur état initial, c'est-à-dire, avant déformation (cf. fig. V.7a). La figure V.11 illustre un exemple de triangulation de Delaunay sur les points de matière suivis : chaque point de la figure précédente devient un sommet de la triangulation.

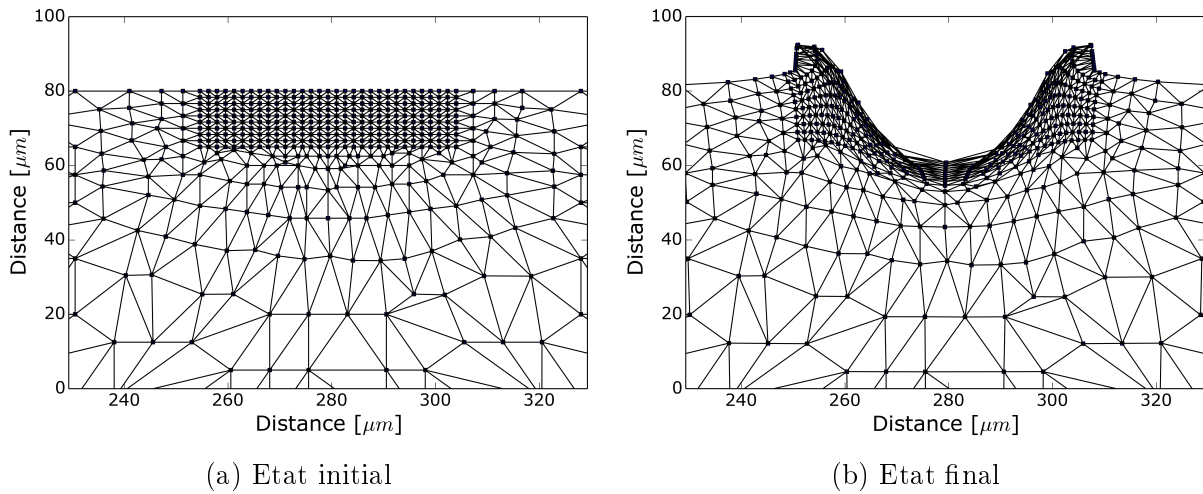


FIGURE V.11 – Triangulation de Delaunay sur les points de matière suivis (les mêmes qu'en fig. V.7).

Après déformation, chaque point s'est déplacé et les triangles se trouvent transformés en conséquence. Il existe un type de transformation particulièrement adapté à la description de cette situation : les transformations affines. On se dispensera de la définition mathématique rigoureuse de ce groupe de transformations et on se contentera de dire qu'une transformation affine est la composition d'une transformation linéaire et d'une translation. La représentation utilisée est donc le couple matrice-vecteur (A_{ij}, B_i) , respectivement la rotation et la translation. Il est possible de montrer qu'en 2D il existe une et une seule transformation affine liant deux triangles non dégénérés. Etant données les sommets du triangle initial (p_1, p_2, p_3) et du final (p'_1, p'_2, p'_3) , on peut trouver la transformation affine qui les lie. Pour cela, il suffit de résoudre le système d'équations suivant pour la matrice A_{ij} et le vecteur B_i

$$p'_{\alpha,i} = \sum_{j=1}^3 A_{ij} p_{\alpha,j} + B_i \quad (\text{V.2})$$

avec $\alpha = 1, 2$ ou 3 indiquant les sommets du triangle. 6 équations pour 6 inconnues. Chaque triplet de points suivis faisant partie du triangle correspond à une transformation affine. Celle-ci peut être utilisée pour transformer les points à l'intérieur du triangle initial dans les points du triangle final. Ainsi, il est possible de calculer le déplacement de tout point à l'intérieur du domaine de la triangulation. Le champ de déplacement interpolé est donc, globalement, une transformation affine « par morceaux ».

La même technique peut s'étendre à trois dimensions, en utilisant toujours la triangulation de Delaunay (cette fois avec des tétraèdres) et les transformations affines en 3D.

V.6 Modèle d'empilement II

Une version plus élaborée du modèle d'empilement a été mise en place. Cette fois, les champs de déplacement complets, obtenus grâce à la triangulation de Delaunay (cf. § V.5.2.2), sont utilisés. Une fois encore, les modèles ont été développés en 2D par simplicité, mais sont susceptibles d'être étendus en 3D. Les simulations EF déjà à la base du modèle à déplacements verticaux (cf. § V.4) sont utilisées dans ce modèle d'empilement.

Deux approches sont décrites dans la suite. Une première, dite discrétisée, maintient la discrétisation spatiale du domaine de la simulation en grille, déjà développée pour le modèle simplifié (cf. § V.4). La microstructure est également représentée par une image labellisée. A la différence du modèle simplifié, les déplacements sont calculés, comme détaillé ensuite, individuellement pour chaque pixel, sur la base des données des simulations EF.

Une deuxième approche, dite vectorielle, vise à améliorer la précision du modèle, en abandonnant la discrétisation spatiale. Seules les frontières des splats ont été considérées. En effet, toute information sur la microstructure, ainsi que son évolution en cours d'empilement, y est contenue. Les frontières entre les splats sont constituées par des séquences de points, à coordonnées en virgule flottante, ce qui permet d'éviter la discrétisation spatiale.

Les deux approches ont recours à des moyens techniques bien différents pour leur implémentation : la première utilise des pixels d'images labellisées et la deuxième des séquences de points. Néanmoins, les étapes de l'algorithme d'empilement et la méthode d'utilisation des données EF sont les mêmes. Les pas qui constituent l'unité de base du procédé itératif d'empilement (l'addition d'une particule au dépôt) peuvent être résumés dans l'énumération qui suit, la figure V.12 illustrant certaines étapes pour deux particules déposées sur substrat vierge.

- 1) **Préparation.** Comme dans la première version du modèle d'empilement, la taille et la vitesse de la particule à ajouter, sont tirées au hasard (cf. le tableau V.1), ainsi que l'abscisse d'impact (x_{imp}). Une observation ultérieure permet de déterminer la simulation EF : si x_{imp} tombe sur le substrat, la simulation sur cuivre est utilisée. Si, en revanche, x_{imp} est sur une particule déjà déposée, la simulation sur tantale est utilisée. Les données EF correspondantes (positions des points de matière suivis, avant et après déformation) sont chargées.
- 2) **Adaptation des données EF.** Les points suivis, avant déformation, sont insérés dans le dépôt. Soit $f(x)$ la surface du dépôt (substrat et particules déjà déposées), l'origine du système de coordonnées des simulations EF (le point de premier contact) va coïncider avec le point de la surface du dépôt ayant x_{imp} comme abscisse. Chaque point est donc placé par rapport à l'abscisse d'impact x_{imp} et à la surface libre $f(x)$, de façon à conserver sa profondeur inchangée. Un point suivi p , de coordonnées (x, y) ($y \leq 0$ avant déformation) dans la simulation EF, aura pour coordonnées $(x' = x_{\text{imp}} + x, f(x') + y)$ dans le domaine d'empilement. Les données EF adaptées sont montrées en fig. V.12 (a) et (d), respectivement pour la première et la deuxième particule. Le déplacement de ces points est connu des simulations EF. L'état déformé est montré en fig. V.12 (b) et (e)).
- 3) **Triangulation.** La triangulation de Delaunay (cf. V.5.2.2) produite par l'ensemble des points placés en 2) est calculée. Elle réalise un pavage de l'espace, en assignant

à chaque point un triangle.

- 4) **Déformation.** Les déplacements sont appliqués au dépôt. Chaque unité (pixel dans la première approche ou point dans la deuxième) est déplacée en conformité au triangle associé. A ce dernier correspond, en effet, une transformation affine qui interpole la déformation locale calculée par EF. Cette transformation est donc utilisée pour déplacer le point (ou le pixel).
- 5) **Ajout de la particule.** Comme dans la première version du modèle d'empilement, la particule est ajoutée (déjà déformée) au domaine (fig. V.12 (c) et (f)).

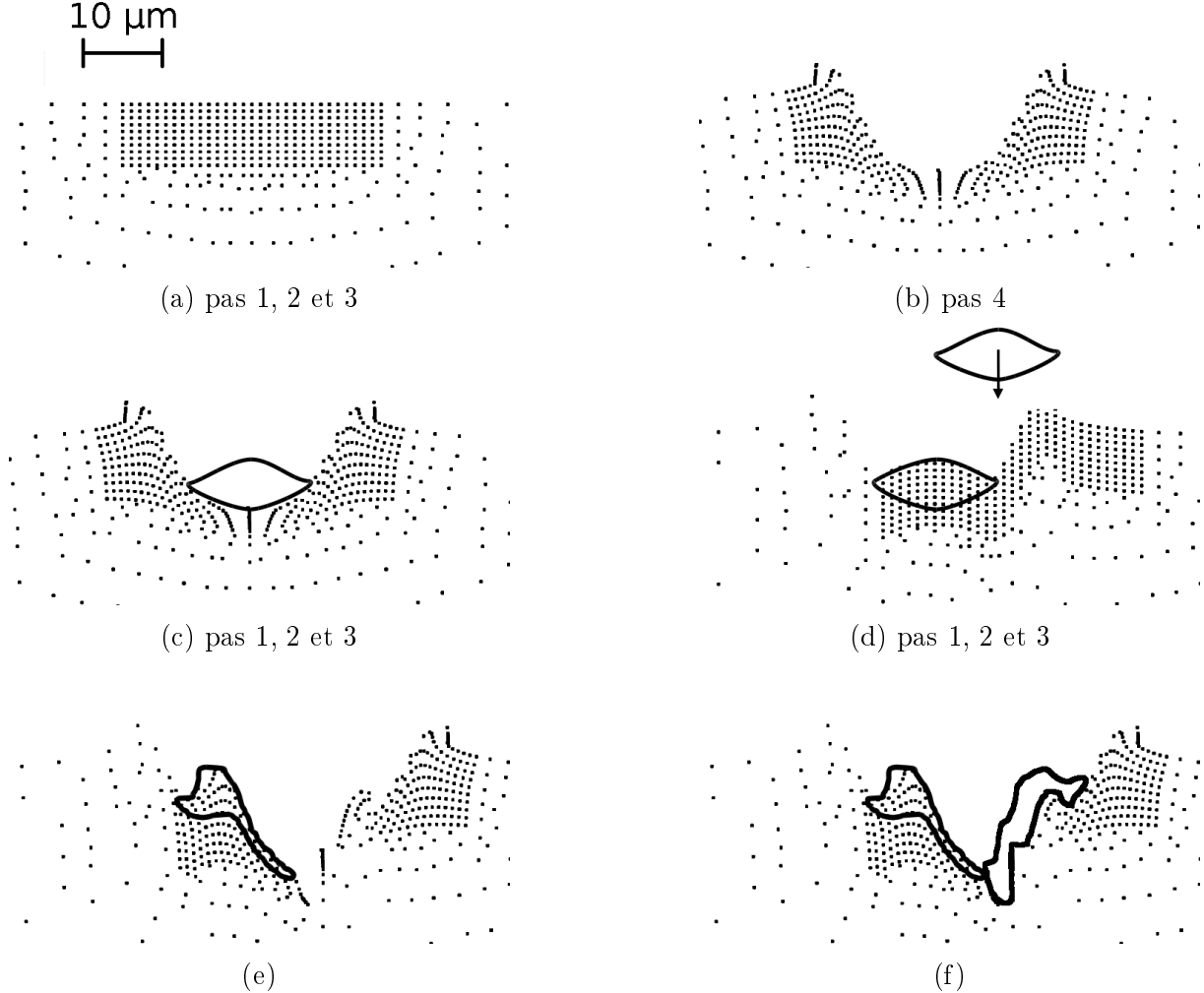


FIGURE V.12 – Schéma illustrant les étapes de la simulation d'empilement, pour les deux premières particules du dépôt (modèle d'empilement II).

Ces opérations de base seront reprises et détaillées pour chacune des deux approches, discrétisée et vectorielle, dans la suite. L'hypothèse forte du modèle, précédemment mentionnée, réside en les étapes 2) et 3) : les déplacements des points de matière, calculés par EF pour l'impact sur un plan, sont adaptées à la surface du dépôt en formation, qui, en revanche, n'est pas plane.

V.6.1 Approche discrétisée

Une première approche, dite discrétisée dans la suite, maintient la discrétisation spatiale du domaine de la simulation en grille développée pour le modèle simplifié (cf. § V.4).

La même technique de représentation des splats, par images labellisées, est maintenue. La figure V.13 montre l'application du modèle pour l'empilement de 10 particules.

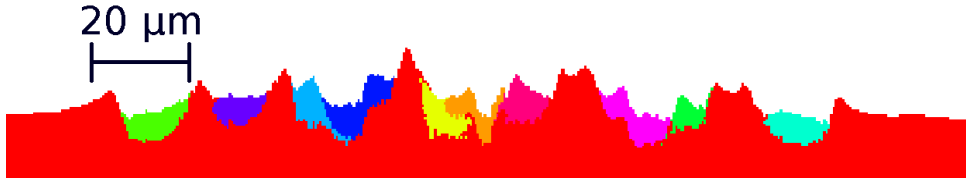


FIGURE V.13 – Simulation d'empilement : approche discrétisée.

L'état initial est constitué par le substrat en cuivre. La surface libre est définie par une liste de coordonnées discrétisées $[y_1, \dots, y_{nx}]$ qui indiquent pour chaque colonne de pixels l'élément non vide le plus élevé. A l'état initial, la surface est plane : $y_i = h$, où h est la hauteur, constante. Les pixels situés en-dessous prennent le label 1 (substrat).

La simulation peut alors se dérouler de façon itérative, comme décrit plus haut. Un label croissant est associé à toute particule : le label 0 pour le vide, 1 pour le substrat, 2 pour la première particule et ainsi de suite jusqu'à la dernière (la n -ième) particule, de label $n + 1$. Pour chaque particule la succession des étapes est la même et commence avec les étapes 1), 2) et 3) (chargement des données EF, adaptation à la surface libre et triangulation). Ensuite, la déformation est appliquée, pixel par pixel, et une nouvelle image représente l'état déformé. Pour augmenter la résolution et éviter ainsi des trous dans la nouvelle image, une technique de sous-échantillonnage est utilisée. Dans l'image avant impact, à l'intérieur de chaque pixel un ensemble de points est choisi. Le label i du pixel est attribué aux points. Chaque point est déplacé à l'aide de la transformation affine, associée au triangle duquel le point fait partie. La position finale du point est discrétisée et correspond à un pixel de la nouvelle image. Celui-ci prend donc le label i qui caractérisait le pixel initial. Un sous-échantillonnage est nécessaire pour éviter que certains pixels de la nouvelle image restent non attribués. La surface libre $[y_1, \dots, y_{nx}]$ est mise à jour après déformation.

Finalement, le splat est ajouté à partir de la connaissance de son épaisseur en tant que fonction $e(x)$ comme dans le modèle simplifié de § V.4). Les pixels compris entre la surface libre déformée $f(x')$ et $f(x') + e(x')$ prennent le label correspondant à la nouvelle particule.

La simulation est poursuivie jusqu'à atteindre le nombre désiré de particules déposées.

La figure V.14 montre quelques impacts successifs sur une zone déterminée du substrat. Certains pixels semblent disparaître et l'intégrité de certains splats est compromise par les impacts successifs. Cela est surtout visible en fig. V.14 (f) où une particule, plutôt volumineuse, vient s'écraser sur d'autres déjà déposées.

Ces défauts sont probablement dus à l'accumulation des erreurs introduites par la discrétisation, qui se répète obligatoirement à chaque itération. Ce comportement chaotique dégrade rapidement la cohérence de la structure du dépôt. L'approche discrétisée a donc été rapidement abandonnée, en faveur de solutions qui évitent la discrétisation, comme détaillé dans la prochaine partie.

Le comportement par rapport à la rugosité ressemble à celui du modèle simplifié de § V.4. En fait, les particules tendent à s'adapter à la rugosité préexistante. Les discontinuités présentes avant l'impact sont transmises à la nouvelle surface libre du dépôt, même si elles sont moindres par rapport au modèle simplifié.

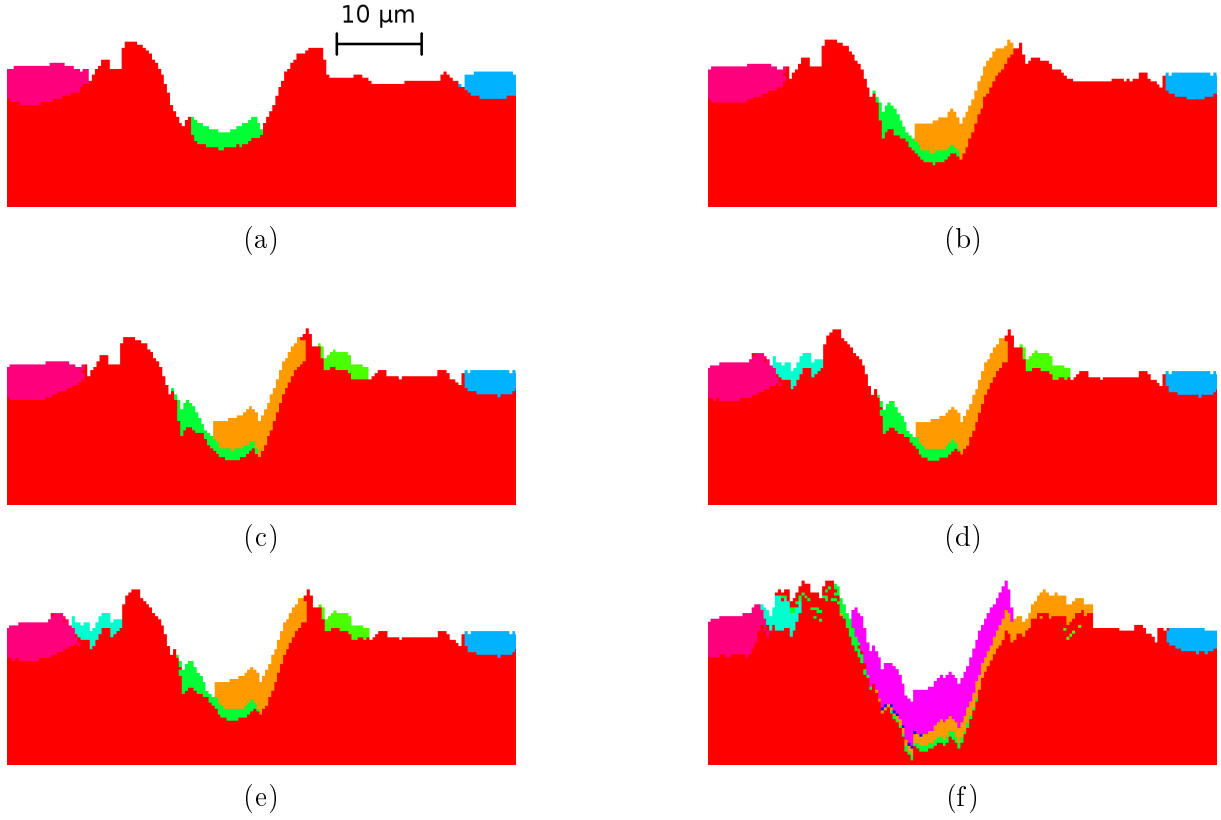


FIGURE V.14 – Simulation d’empilement : collisions successives (approche discrétisée).

V.6.2 Approche vectorielle

Une deuxième approche, dite vectorielle, vise à améliorer la précision et la fiabilité du modèle en abandonnant la discrétisation spatiale. Cela est possible si on décrit les splats par leur frontières et non par leur intérieur, comme dans l’approche précédente. En effet, toute information sur la microstructure, ainsi que son évolution en cours d’empilement, y est contenue.

Dans cette approche, les frontières entre les splats sont constituées par des séquences de points à coordonnées en virgule flottante (en anglais *floats*), ce qui permet d’éviter toute discrétisation spatiale.

Les changements introduits par l’approche vectorielle se traduisent dans une nouvelle façon de représenter les données et une implémentation différente de l’algorithme. D’abord, la microstructure est constituée par l’ensemble des frontières entre les splats. Celles-ci sont conservées en forme de « dictionnaire », une classe Python bien adaptée au cas présent, car elle permet d’associer un nom (identifiant de la frontière) à un objet (l’ensemble des points constituant la frontière). Si chaque splat est identifié par un nombre entier s_i , il est naturel de donner un nom à la frontière entre celui-ci et le splat s_j , qui contient les deux identifiants, comme par exemple « s_i-s_j ». Pour éviter les doublons, il suffit d’établir une règle d’ordre entre les deux identifiants (par exemple, la frontière entre les splats 4 et 8, s’écrit toujours « 8-4 » et non « 4-8 »). L’objet, lié à ce nom, est l’ensemble des points qui constituent la frontière susmentionnée.

La microstructure est donc complètement donnée par le « dictionnaire » formé par l’ensemble des associations nom-points. A tout moment, il est possible d’extraire l’intégralité de la frontière d’un splat déterminé, identifié par l’entier s_i , en ajoutant l’une à l’autre les frontières qui contiennent s_i dans leur nom.

L’autre ingrédient que le modèle utilise est la surface libre du dépôt (comme fonction

de l'abscisse x). A différence des modèles précédents, ici la surface est représentée par une succession de points.

Une fois les données EF chargées et adaptées à la surface libre, comme dans l'approche discrétisée, le modèle opère à la déformation de la surface libre : les points qui la représentent sont déplacés en conformité avec la simulation EF. Cette déformation peut engendrer, là où elle le plus intense, l'éloignement des points. Afin de restaurer la densité initiale des points, ceux-ci sont interpolés avec des techniques linéaires (splines). Une nouvelle succession de points (uniformément espacés) est ainsi produite.

L'étape suivante est la déformation des frontières internes. Cette opération suit le même schéma de l'approche discrétisée (cf. § V.6.1), avec l'emploi de la triangulation de Delaunay et des transformations affines. Pour chaque point de frontière, le triangle d'appartenance est identifié et la transformation affine associée réalise le déplacement.

Une fois que tous les points ont été traités, l'algorithme procède à l'ajout de la nouvelle particule. De même que par les modèles précédents, l'épaisseur $e(x)$ calculée par EF est à la base de cette opération. Il permet, dans ce cas, de mettre à jour la surface libre. Ensuite, de nouvelles frontières sont créées, une pour chaque splat (ou substrat) en contact avec la nouvelle particule. La surface libre n'est pas considérée comme une frontière. Le processus se termine ainsi et peut être réitéré autant de fois que nécessaire pour atteindre le nombre de particules souhaité.

La figure V.15 illustre la microstructure (surface libre et frontières internes) obtenue après chaque itération du modèle d'empilement, pour les quatre premières particules déposées. Le résultat de la simulation est affecté par un problème, actuellement non résolu, qui provoque la dispersion de certains points et le croisement de certaines frontières, comme en figure V.15. Les champs de déformation en provenance des simulations EF sont caractérisés par des forts gradients en proximité de l'interface substrat-particule. Ce fait est soupçonné d'être à l'origine de ce comportement. La méthode d'interpolation de la triangulation trouve, en effet, ses limites en présence de grandes déformations. D'une part, le champ de déplacement interpolé est linéaire à l'intérieur de chaque triangle et, quand ici les variations de déformation sont soudaines, il ne peut pas les représenter correctement. D'autre part, la triangulation même, qui est calculée avant déformation, peut perdre sa structure après l'impact. Nul n'assure que la triangulation de Delaunay soit conservée après déformation. Certains triangles peuvent, en effet, se superposer partiellement ou se déformer grandement, ce qui expliquerait respectivement le croisement de certaines frontières et l'éloignement de certains points. Cette question est reprise et traitée dans les perspectives (cf. VII.2), où des pistes pour l'amélioration du modèle sont proposées.

La figure V.16 compare un dépôt observé et un simulé par l'approche vectorielle (après une cinquantaine d'itérations). En faisant abstraction des problèmes déjà cités de dispersion des points et de croisement de frontières, certains splats restent intègres et peuvent être comparés aux splats observés. La comparaison avec l'observation expérimentale montre, toutefois, un certain décalage dans la forme des splats individuels. Cela est dû à des multiples causes. En premier lieu, le modèle est en 2D donc il n'est pas directement comparable à la réalité, en 3D. Deuxièmement, le modèle souffre des mêmes limitations, vis-à-vis de la rugosité, que les autres approches. Toute rugosité est en effet conservée par l'impact et transmise à la surface libre.

Le modèle, à l'état actuel, nécessite des mises au point ultérieures, d'une part pour éliminer les problèmes constatés et, d'autre part, pour inclure les effets de rugosité et en limiter ainsi les conséquences. Celles-ci, déjà évoquées, viennent de ce que les impacts des simulations EF à la base du modèle d'empilement sont sur un substrat plat.

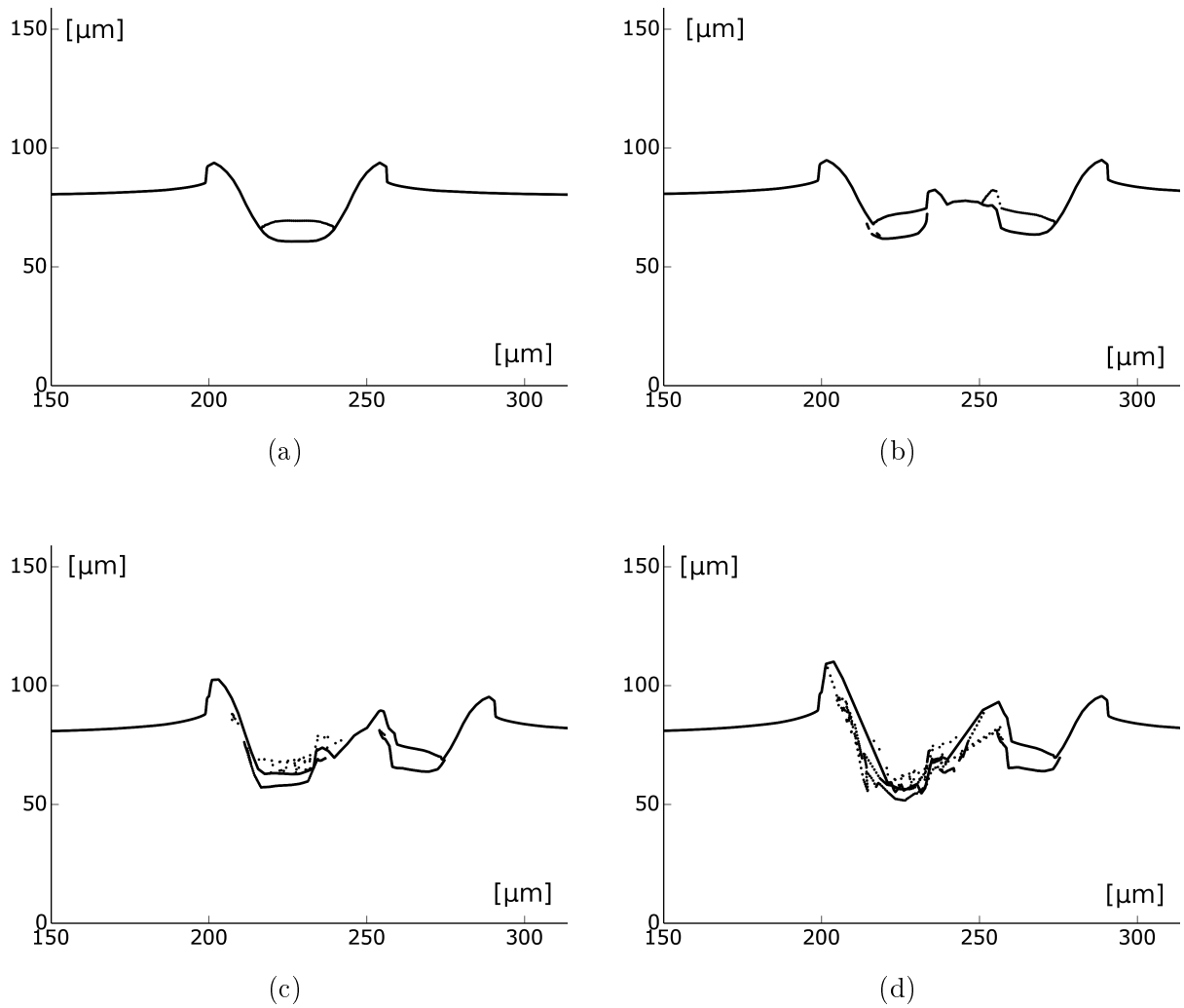
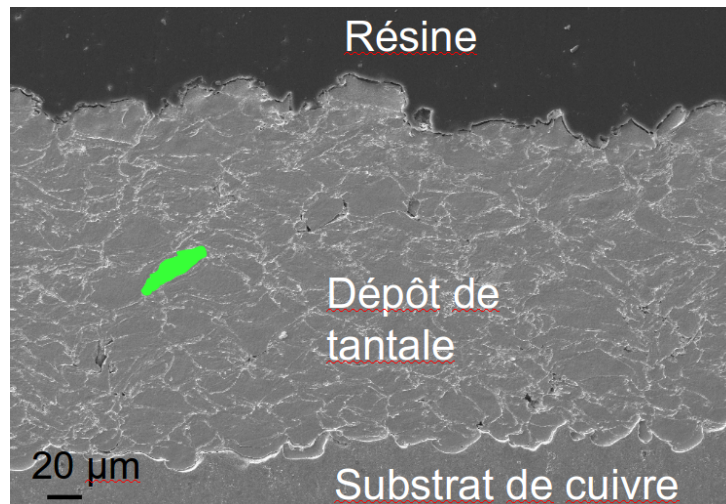
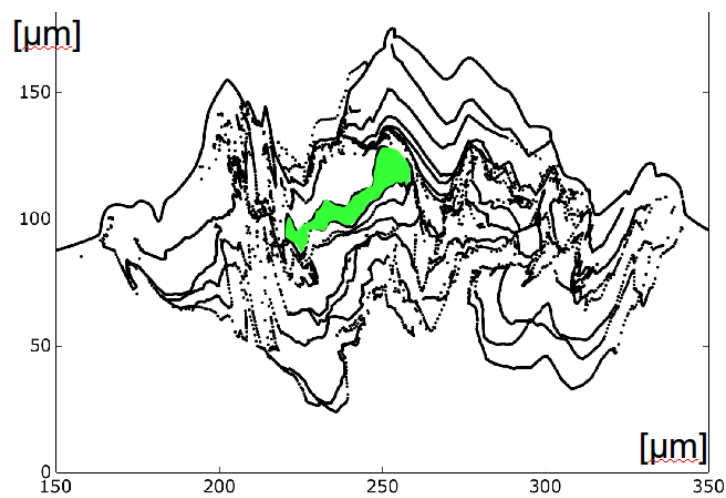


FIGURE V.15 – Empilements successifs des quatre premières particules (approche vectorielle). Les images résultantes du modèle 2D sont comparables à des sections d'un dépôt. Les lignes qui constituent les frontières des splats sont, dans l'approche vectorielle, des séries de points.



(a) Vue au MEB en coupe, après attaque chimique



(b) Simulation d'empilement

FIGURE V.16 – Comparaison entre l'observation expérimentale et la simulation d'empilement (approche vectorielle).

V.7 Conclusion

L'homogénéité du dépôt a été vérifiée par des mesures de dureté (lignes d'indentation), effectuées à différentes distances de l'interface dépôt-substrat.

Les bases pour un modèle d'empilement fondé sur l'utilisation des résultats des simulations EF ont été jetées. Deux méthodes d'interpolation des données EF ont été essayées et celle de triangulation de Delaunay a été retenue. La construction d'un dépôt cold spray est simulée dans un procédé itératif où les particules s'écrasent, une par une, sur le substrat. Le modèle a été mis en place en 2D, pour favoriser la simplicité d'implémentation. Les données d'entrée, par conséquent, consistaient en une série de simulations d'impact en 2D de sphères (voir le chapitre IV).

Une implémentation préliminaire, très simplifiée, du modèle d'empilement utilisait seulement les déplacements verticaux. Le modèle complet a été développé, d'abord en utilisant une discrétisation spatiale en grille. L'accumulation des erreurs dues à cette discrétisation a incité à la mise en œuvre d'une nouvelle approche, sans discrétisation spatiale.

Les résultats, partiellement satisfaisants, expriment la nécessité d'un développement ultérieur du modèle. Une possible direction de travail est dans l'amélioration de la méthode d'interpolation utilisée pour imposer les déplacements mesurés dans les simulations EF. Une autre amélioration du modèle porte sur la prise en compte des effets de rugosité. Ces questions sont abordées dans le chapitre VII, concluant cette thèse.

Chapitre VI

Validation des simulations d'impact

VI.1 Introduction

Dans toute modélisation, le juge ultime de sa réussite est la confrontation avec l'expérience. Seule cette comparaison peut, en effet, décider si les hypothèses et les simplifications, nécessairement présentes dans le modèle, sont correctes et ne remettent pas en cause sa capacité à représenter la réalité. Ce chapitre met en œuvre la comparaison entre résultats de modélisation et observation expérimentale.

La validation du modèle d'empilement est prématurée, celui-ci n'étant pas dans un état de développement abouti. Les résultats, montrés dans le chapitre V, sont encore à considérer comme préliminaires. D'ailleurs, le modèle est implémenté pour le 2D. Même en présence de résultats complètement satisfaisants, il serait pourtant infondé de les comparer à un dépôt réel. En revanche, la validation des simulations d'impact est possible et tout à fait envisageable.

Le chapitre présent est centré sur la comparaison des résultats des simulations EF des particules réelles (voir le chapitre IV) avec les observations expérimentales issues des projections « single splat » (faible débit de poudre et haute vitesse de déplacement de la buse). Ce mode de projection permet d'obtenir des splats individuels et isolés, issus d'impacts plus ou moins indépendants les uns des autres. Ceux-ci peuvent donc être directement confrontés aux simulations EF, constituées aussi d'impacts individuels de particules réelles.

Il faut constater que, dans un dépôt, deux types bien différents de splats existent : les « tantale sur cuivre » (Ta sur Cu dans la suite), qui constituent la première couche seulement, et les « tantale sur tantale » (Ta sur Ta), qui forment la majorité du dépôt. Ces deux cas sont traités et analysés séparément.

VI.2 Splats de Ta sur Cu

La première catégorie de splats à l'examen est celle du type « Ta sur Cu ». Il s'agit, donc, des particules constituant la première couche du dépôt, en contact avec le substrat en cuivre.

Des observations au MEB en perspective (obtenues avec l'inclinaison de la platine porte-échantillon autour de 15°) ont été effectuées sur l'échantillon « single splat », avant qu'il soit préparé pour la MTX comme détaillé ci-après. La figure VI.1 montre quelques exemples de splats Ta sur Cu.

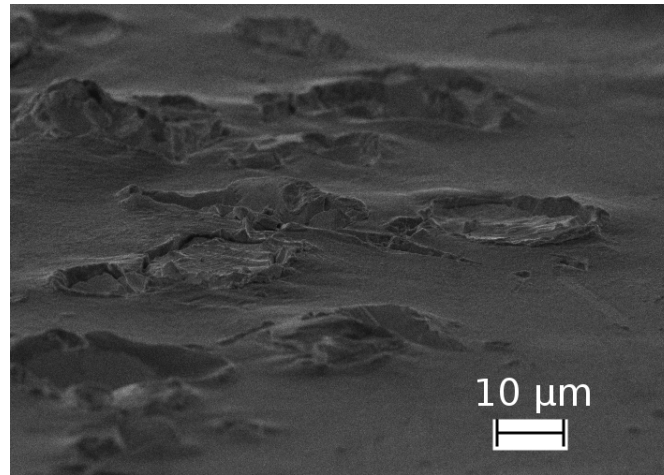
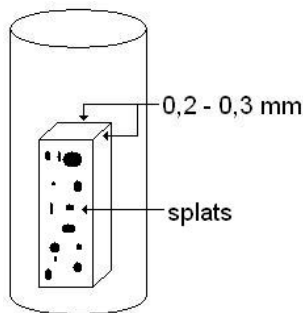


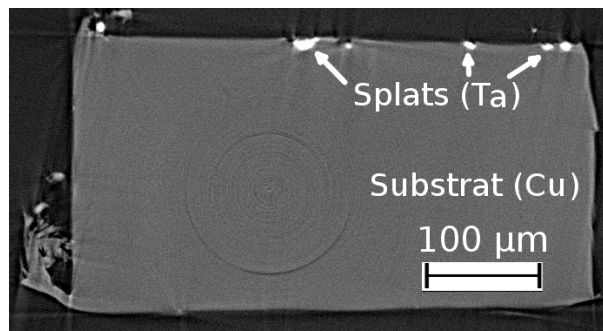
FIGURE VI.1 – Vue au MEB en perspective de splats de Ta sur Cu.

VI.2.1 Microtomographie

A l'occasion des observations 3D de la poudre par microtomographie (MTX dans la suite), déjà décrite en chapitre III, des échantillons contenant des splats ont pu être imagés en 3D. La figure VI.2a montre un schéma illustrant un échantillon de type « single splat ». Celui-ci provient d'une plaquette en cuivre poli « miroir » où de la poudre de tantale a été projetée à faible débit et à haute vitesse de balayage de la buse, de façon à retrouver des splats isolés (ce type de projection sera appelée « single splat » dans la suite). Deux échantillons destinés à la MTX ont été découpés, en forme d'allumette, à partir de la même plaquette à l'aide d'une scie à fil diamanté. Ils ont été ensuite enrobés dans une résine à froid. Leur longueur est de quelques centimètres et les côtés de leur section sont d'environ 0,2 – 0,3 mm.



(a) Echantillon MTX



(b) Section d'image MTX

FIGURE VI.2 – (a) : illustration schématique d'un échantillon « single splat » préparé pour la MTX.

(b) : Section d'une image microtomographique d'un échantillon « single splat ».

La figure VI.2b montre une section de l'image 3D résultant de la MTX de l'échantillon susmentionné. Le contraste entre les deux matériaux est très marqué, ce qui permet de distinguer nettement les splats du substrat. Des artefacts sont visibles dans l'image, notamment sous forme de cercles, situés au centre du substrat, et de rayons, en correspondance des zones les plus claires. Ces aberrations sont souvent présentes en MTX et peuvent être produites par différents phénomènes comme le durcissement des rayons X et les non-linéarités du détecteur. Des algorithmes de correction ont été appliqués, mais l'image n'est pas complètement nettoyée des aberrations. Cela ne constitue pas un pro-

blème pour la segmentation des splats car ceux-ci ne sont pas affectés directement par les artefacts.

La résolution, de $0,77 \mu\text{m}/\text{voxel}$ pour tous les scans, est liée à la configuration du système optique et aux propriétés de la camera CCD.

La même méthode de segmentation, déjà appliquée avec succès pour les images microtomographiques de la poudre (voir le chapitre III), a été utilisée ici pour extraire une collection des splats. La bibliothèque 3D des splats qui en résulte contient environ 500 particules.

Quelques exemples des splats de la bibliothèque sont présentés en fig. VI.3. Trois phases sont bien visibles dans l'image : en blanc les splats Ta sur Cu (indiqués par les flèches), plus ou moins enfoncés dans le substrat en cuivre (visible en gris clair). La résine enrobant l'échantillon apparaît, enfin, aux bords de l'image en gris foncé.

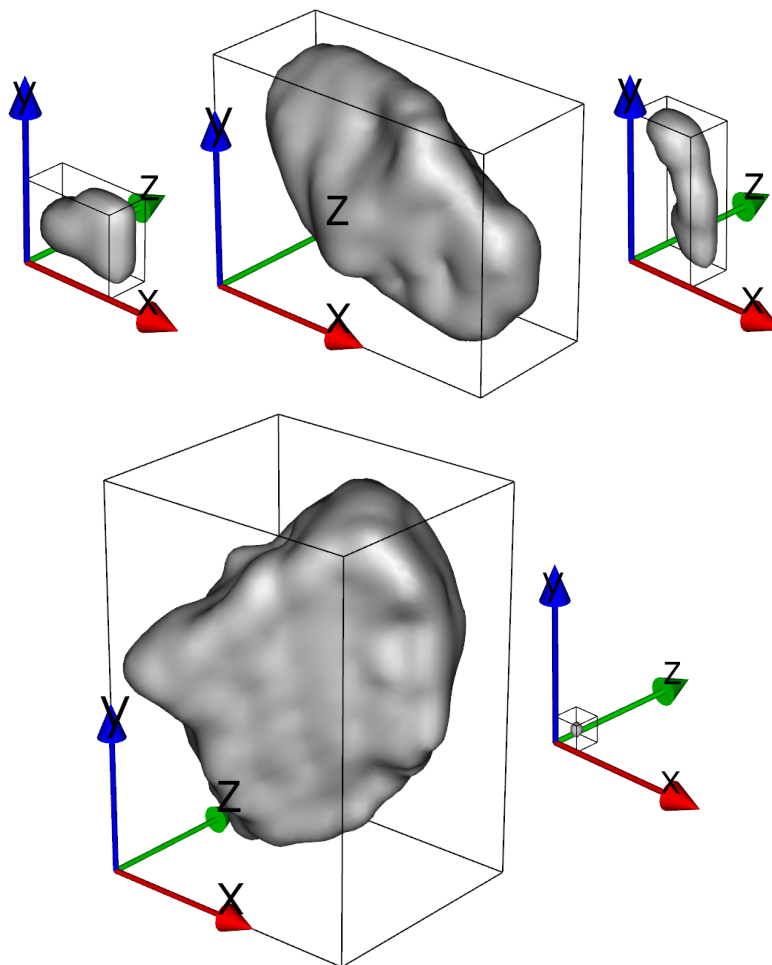
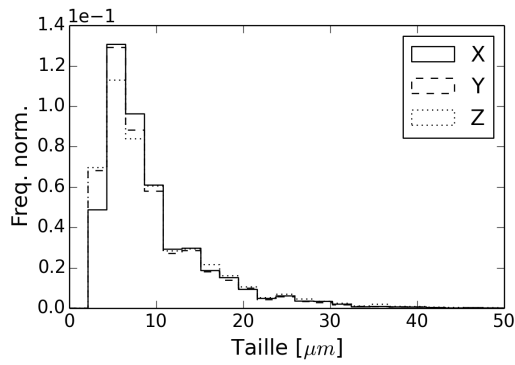


FIGURE VI.3 – Exemple des splats de la bibliothèque 3D.

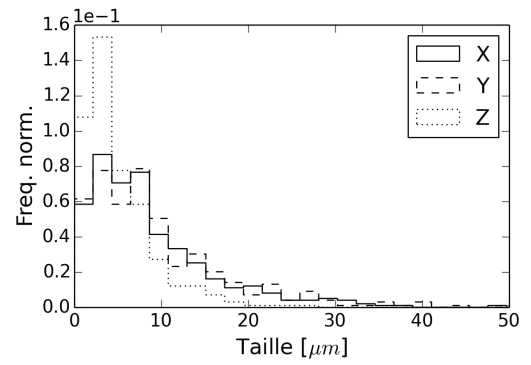
Les mesures morphologiques déjà effectuées sur les particules de la poudre (voir le chapitre III) ont été réalisées sur les splats.

Une comparaison des particules avant et après impact est présentée en figure VI.4. La première figure (a) est relative à la poudre et contient les histogrammes des 3 dimensions (le long de X, de Y et de Z) des boîtes englobantes. L'ensemble des données de la bibliothèque MTX du chapitre III y est montré. Comme on s'y attend, il n'y a pas de différence statistiquement notable entre les trois directions.

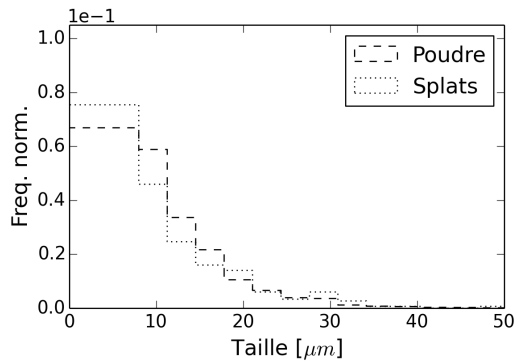
La deuxième figure (b) montre les mêmes histogrammes pour la bibliothèque MTX des splats. Si, pour la poudre, les trois directions X, Y et Z sont arbitraires et équivalentes, pour les splats elles présentent une signification particulière, du fait que la direction de



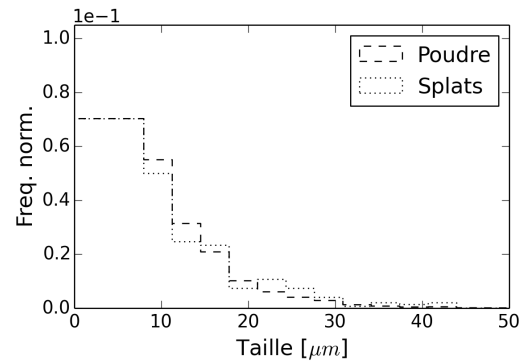
(a) Poudre



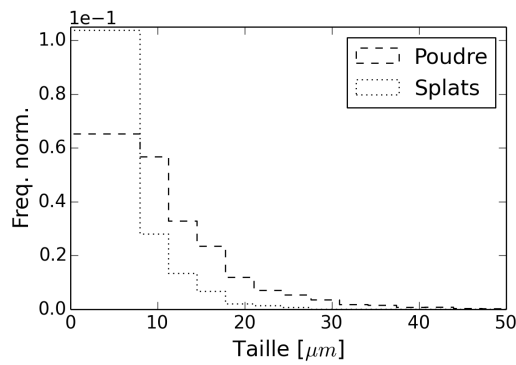
(b) Splats



(c) X



(d) Y



(e) Z

FIGURE VI.4 – Comparaison des bibliothèques des particules de la poudre et des splats : histogrammes des longueurs des côtés des boîtes englobantes au long de X, Y et Z. X et Y définissent le plan de surface du substrat, Z la direction à lui perpendiculaire.

projection se distingue des autres : X et Y définissent le plan de surface du substrat et Z la direction qui lui est perpendiculaire. Cette dernière se distingue des deux autres car son histogramme est décalé vers la gauche, du fait que les particules ont subi une déformation à l'impact et un écrasement le long de Z.

Les trois figures suivantes (c), (d) et (e) montrent une comparaison directe des deux populations de particules de poudre et de splats. Si pour X et Y les différences entre les deux populations ne sont pas statistiquement significatives, pour Z l'histogramme des splats est décalé vers la gauche par rapport à celui de la poudre, à cause de l'écrasement à l'impact déjà mentionné.

Pour résumer, les populations des particules de la poudre et des splats présentent les mêmes caractéristiques de taille pour les directions X et Y (surface du substrat), mais pas pour la direction Z, perpendiculaire au plan du substrat, à cause de l'écrasement à l'impact subi par les splats.

En conclusion, les populations observées des splats, d'une part, et des particules de la poudre, d'autre part, présentent les mêmes caractéristiques, compte tenu des déformations à l'impact qui les différencient. Ce fait est une condition préalable à la continuation de l'analyse, parce qu'il garantit l'absence de sélection des particules lors de leur adhésion au dépôt, à l'exclusion probablement des plus petites (négligées dans cette étude) qui ayant moins d'inertie ont la tendance à suivre le flux de gaz de projection. La population des splats observés peut alors être comparée à celles des particules réelles dont on a simulé l'impact, comme détaillé ensuite.

VI.2.2 Comparaison entre splats observés et simulés

La question suivante est maintenant abordée : comment utiliser les observations microtomographiques afin de valider les simulations par éléments finis des impacts sur cuivre ? La situation idéale, ou devrait-on dire utopique, serait de pouvoir suivre individuellement les particules, de façon à connaître simultanément leur vitesse en vol et leur forme avant et après l'impact. La comparaison avec la simulation serait alors directe et significative. Malheureusement, il n'est pas encore possible d'observer une particule donnée en vol, de mesurer donc simultanément sa taille et sa vitesse et de pouvoir la repérer après impact, une fois déposée. En d'autres mots, la validation directe des simulations EF est empêchée par le fait que les impacts individuels ne sont pas observables.

Des comparaisons statistiques sont, en revanche, possibles en utilisant les données disponibles (expérimentales et numériques). Pour résumer, ces données consistent en :

1. Bibliothèque 3D des particules de la poudre (avant impact). Environ 15,000 objets.
2. Bibliothèque 3D des splats « Ta sur Cu » (après impact). Environ 500 objets.
3. Simulations d'impact EF des particules réelles. Environ 30 calculs réussis.

Les populations des splats observés et simulés peuvent alors être comparés statistiquement, sur la base des mesures morphologiques caractérisant leur forme et taille. Les mesures suivantes sont considérées pour cette comparaison : dimensions de la boîte englobante le long des axes principaux d'inertie (B_1 , B_2 , B_3), rayon équivalent (Req), moments d'inertie principaux adimensionnels (λ_1 , λ_2), sphéricité (Sph) et imbrication (Imb). Les définitions ont été données en chapitre III.

La comparaison des histogrammes relatifs aux mesures citées est montrée en fig. VI.5, pour les deux populations des splats observés et simulés. Les fréquences (ordonnées des histogrammes) sont normalisées pour que l'aire totale soit unitaire ($\sum_i h_i dx_i = 1$, où h_i est la hauteur et dx_i la largeur de chaque barre). Les deux populations, très différentes en nombre, peuvent ainsi être représentées dans la même figure. Le décalage substantiel

constaté pour certains paramètres est imputable au fait que les particules simulées ne décrivent pas l'ensemble de la population des particules de poudre projetée. En effet, à cause de la robustesse limitée des calculs, les simulations réussies ne sont pas très nombreuses : une trentaine pour les impacts sur cuivre (voir le chapitre IV). La statistique de cette population est, donc, relativement pauvre. Par ailleurs, la réussite des simulations dépendait, entre autres, de la forme et de la taille de la particule. La population des splats simulés n'a pas, pourtant, la même composition en classes de forme que celle des particules. Au contraire, comme illustré au chapitre IV (fig. IV.33), certaines classes se trouvent plus représentées, d'autre moins et d'autre encore sont complètement absentes de la population des splats simulés. La comparaison entre les mesures morphologiques des particules simulées (les réussites seulement) avant impact et celles de leur population d'origine (bibliothèque 3D de la poudre, cf. chapitre III) est montré en fig. VI.6, . Certaines mesures, notamment λ_1 , présentent déjà le décalage qu'on retrouve pour les splats de fig. VI.5. Cela n'est pas, pourtant, le résultat d'une mauvaise simulation d'impact, mais a pour origine une erreur initiale, due au fait que la réussite d'une simulation dépend, entre autres, de la morphologie de la particule. L'expérimentation semble donc se trouver en accord avec les modèles et les paramètres choisis pour les simulations par éléments finis. L'accord est confirmé par l'analyse de la pénétration des particules dans le substrat.

Dans cette étude, trois différentes définitions de pénétration ont été utilisées : la maximale, la minimale et celle au niveau du barycentre. Les trois définitions sont illustrées en fig. VI.7, dans le cas d'une simulation 2D. La mesure se fait à partir de la surface du substrat avant déformation (la ligne « $y = 0$ » sur la figure). Les pénétrations sont, par définition, négatives au-dessus du substrat, nulles sur la surface et positives à l'intérieur du substrat.

Pour chacune des trois définitions, les histogrammes des pénétrations simulées et observées sont comparées en fig. VI.8 (figures de gauche). Les barres d'erreur représentent les écarts types ($\sum_{i=1}^n \sqrt{x - \bar{x}} / (n - 1)$). Pour les pénétrations du barycentre et minimale, une différence entre les deux populations est évidente, même si elle n'est pas pas très grande par rapport aux écarts types. Les histogrammes des simulations sont, en effet, toujours légèrement décalés vers la droite, montrant des pénétrations plus élevées que expérimentalement. Les figures de droite aident à fournir une explication. La relation entre B_2 (deuxième longueur de la boîte englobante parallèle aux axes principaux d'inertie) et les pénétrations (en noir, les splats observés et, en rouge, les simulés) est ici illustrée. Le paramètre B_2 est utilisé à cause de sa bonne corrélation avec les mesures granulométriques. Au chapitre III avait été trouvé que B_2 est la mesure morphologique qui représente le mieux la taille mesurée par granulométrie laser. Les mesures taille/vitesse sur les particules en vol sont fondées sur le même principe d'aire projetée. Dans les deux cas, en effet, la taille est estimée en 2D donc sur une projection.

Le calcul, à cause du fort taux d'échec des simulations, ne permet pas ici de restituer l'intégralité de la population des particules de la poudre (seuls les diamètres inférieurs à 25 μm sont exploitables). La non sphéricité des particules contribue vraisemblablement aux forts écarts types des pénétrations mesurées expérimentalement, du fait des différentes orientations possibles des particules à l'impact. Toutefois, on peut constater une bonne corrélation entre les particules simulées et l'expérience permettant de valider la qualité des calculs réalisés. Une légère surestimation des profondeurs de pénétration a également été relevée. Celle-ci était prévisible, du fait qu'une publication récente [66] compare différents modèles de (visco-)plasticité et conclut que l'utilisation du modèle de Johnson-Cook porte à surestimer la déformation.

Les mêmes graphiques de droite en figure VI.8 illustrent un effet dû à la non-sphéricité des particules. Dans les deux cas, simulé et observé, on constate une dispersion élevée

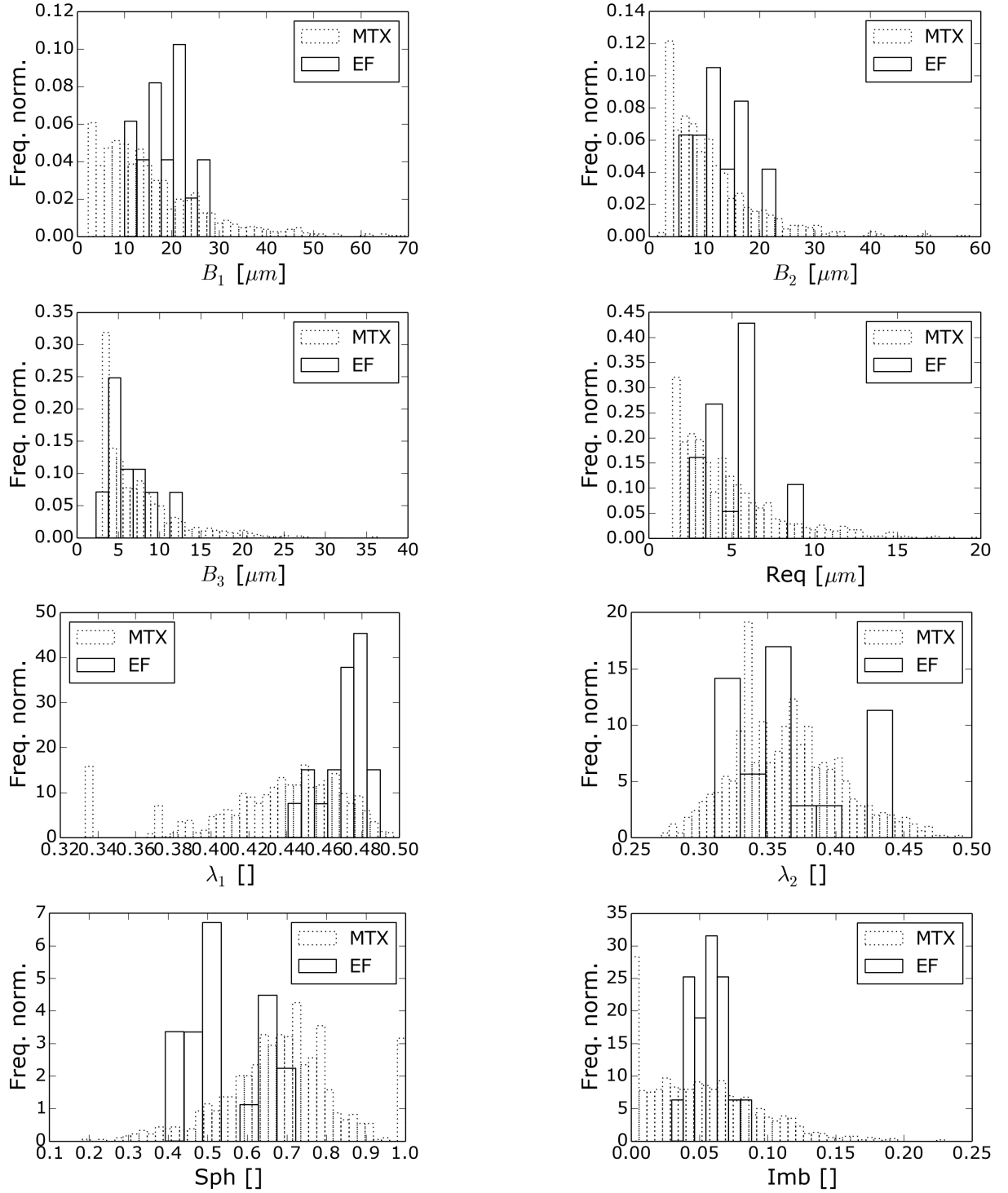


FIGURE VI.5 – Comparaison statistique des splats simulés (EF) et observés par MTX.

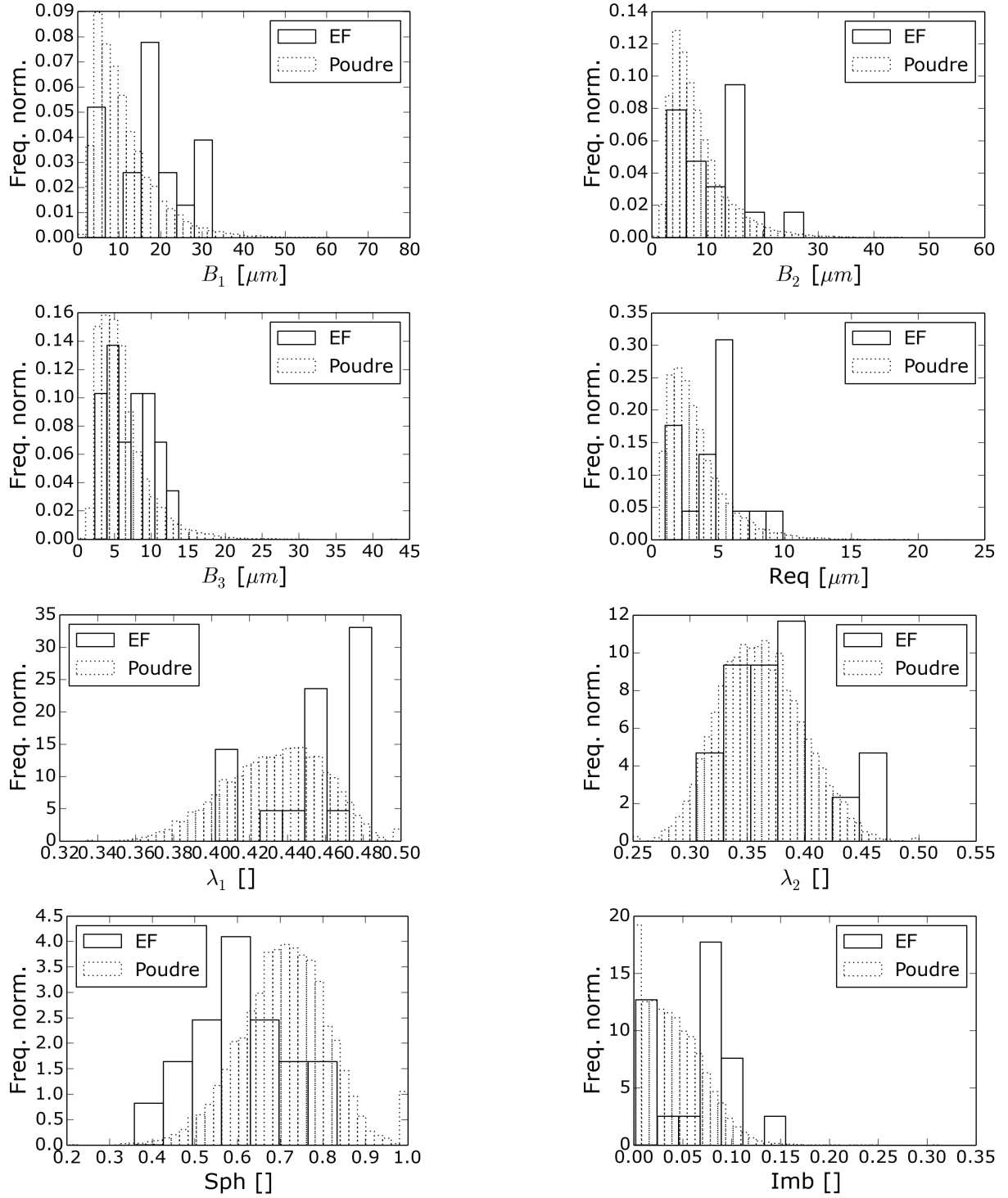


FIGURE VI.6 – Comparaison statistique à l'état initial (avant impact) des particules dont l'impact a été simulé et de leur population d'origine (bibliothèque 3D des particules, cf. [CHAP Poudre]).

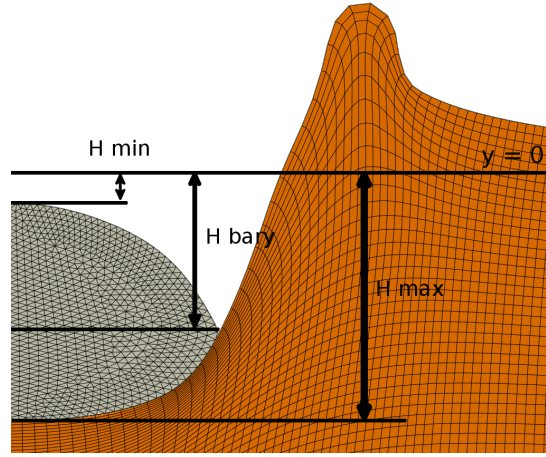


FIGURE VI.7 – Définition des trois pénétrations : minimale (H_{\min}), maximale (H_{\max}) et du barycentre (H_{bary}). La ligne « $y = 0$ » représente la surface du substrat avant déformation.

des deux nuages de points. Cela est dû à la combinaison de deux effets : d'une part, la dispersion des vitesses des particules (pour une taille donnée) et, d'autre part, la forme et l'orientation à l'impact. A cela s'ajoute, pour les plats observés, l'interaction entre les impacts, bien qu'elle ait été minimisée par les conditions de projection (faible débit de poudre et haute vitesse de déplacement de la buse). Cet effet est totalement absent des simulations EF.

Une autre comparaison, plus directe, entre splats simulés et splats observés est possible. Sans prétendre à la même valeur probante de la comparaison statistique déjà considérée, la confrontation individuelle entre splats simulés et observés apporte aussi à l'analyse. La méthode est la suivante. Pour chaque simulation, la particule déformée a été extraite du calcul et traduite en image, de façon à pouvoir effectuer sur elle l'ensemble des mesures morphologiques déjà citées. Parmi les splats observés par MTX (eux aussi dotés de l'ensemble des mesures morphologiques), une sélection a été opérée pour extraire les splats morphologiquement proches des simulés. Cela s'est fait suivant quatre critères, correspondant à quatre mesures morphologiques : le volume (V), les moments d'inertie adimensionnels (λ_1 , λ_2), la sphéricité (Sph) et l'imbrication (Imb). Les indices s et o indiquent, respectivement, « simulé » et « observé ». Les critères sont :

1. $0,85 < V_o/V_s < 1,15$ (le volume observé ne diffère pas de plus de 15% de celui du cas simulé)
2. $|(\lambda_1, \lambda_2)_s - (\lambda_1, \lambda_2)_o| < 0,03$ (le couple $(\lambda_1, \lambda_2)_o$ se trouve à une distance inférieure à 0,03 du cas simulé)
3. $|Sph_o - Sph_s| < 0,05$ (la sphéricité observée ne diffère de pas plus de 0,05 de celle du cas simulé)
4. $0,7 < Imb_o/Imb_s < 1,3$ (l'imbrication observée ne diffère de pas plus de 30% de celle du cas simulé)

Les critères ont été choisis de façon à avoir, pour chaque particule simulée, un nombre variable (entre 2 et 10) de splats observés « morphologiquement compatibles ». Cela équivaut à dire qu'il existe toujours un groupe de splats, parmi les 500 observés, qui présentent la même morphologie que celle d'un splat simulé donné. Comme dit précédemment, cette comparaison ne constitue qu'une validation partielle des simulations d'impact mais présente un double avantage : d'une part, établir une correspondance visuelle entre la simulation et l'expérience et, d'autre part, rapporter la pénétration simulée seulement à celle

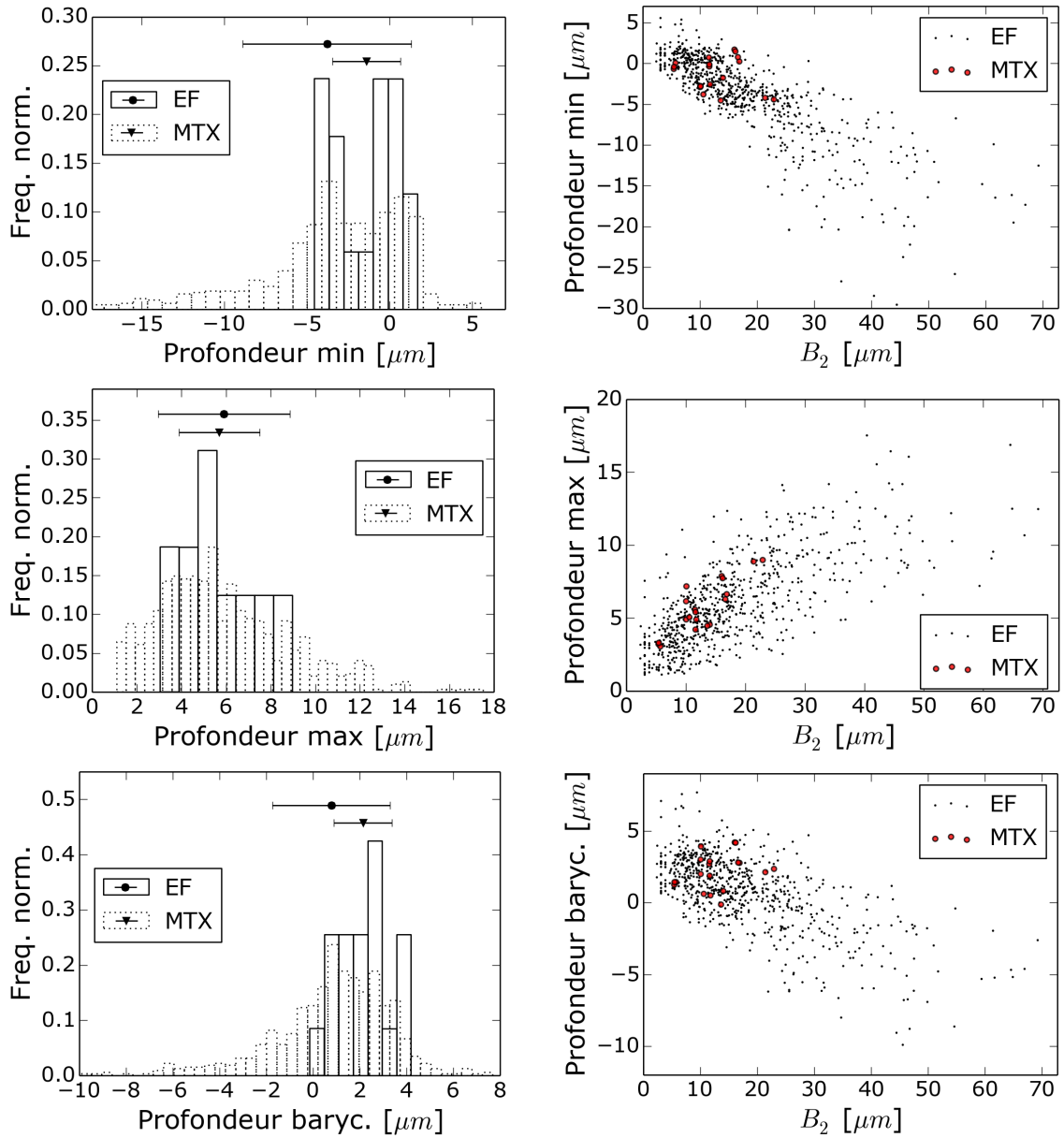
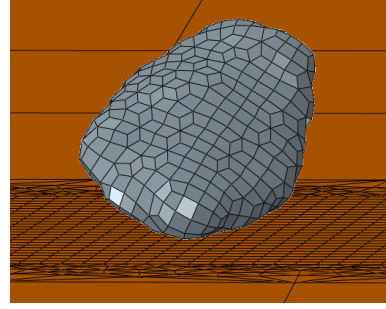
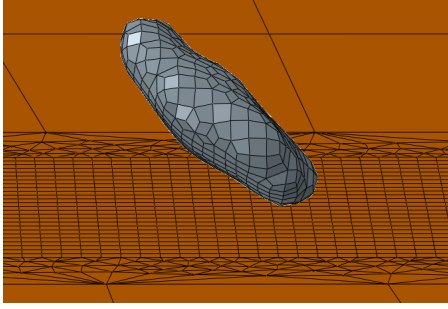


FIGURE VI.8 – Comparaison des splats simulés (EF) et observés par MTX. A gauche, histogrammes des pénétrations. A droite, relation entre B_2 et pénétrations.

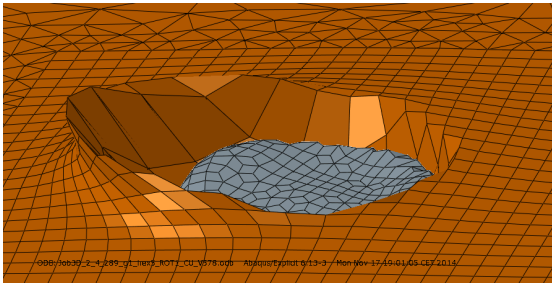
des splats observés qui sont morphologiquement compatibles.

Les figures VI.9 et VI.10 montrent, à titre d'exemple, la comparaison directe de deux splats simulés avec des splats observés au MEB et d'autres par MTX. La particule réelle est montrée dans l'état initial ((a) sous deux angles différents) et dans l'état final de la simulation d'impact ((b) avec substrat et (d) splat seul). (c) montre un splat vu au MEB en perspective et (e) un des splats de la bibliothèque MTX sélectionnés pour leur ressemblance (sous deux angles différents).

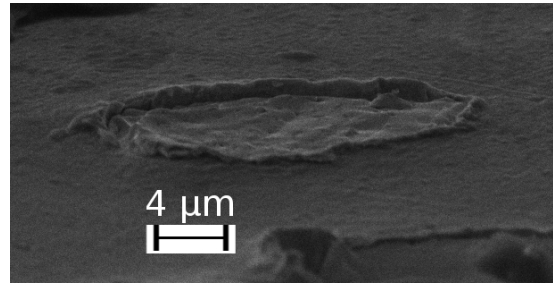
La comparaison des pénétrations simulées et observées est montrée en figure VI.11. Les pénétrations simulées se trouvent en accord avec les observations expérimentales dans la majorité des cas. Dans les autres cas, les simulations présentent souvent une pénétration plus élevée que celle des observations. Si le même phénomène est observable dans la réalité (cf. fig. VI.12), selon les mesures montrées en fig. VI.8, cette situation se présente avec une fréquence moins élevée dans la réalité que dans les simulations. Cela pourrait s'expliquer par la surestimation des déformations du modèle de JC déjà mentionné(cf.



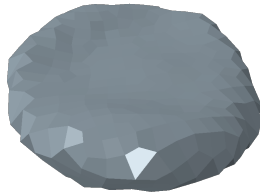
(a) Etat initial



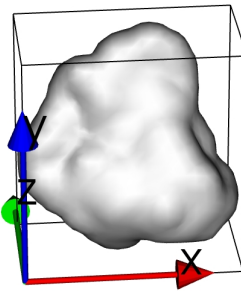
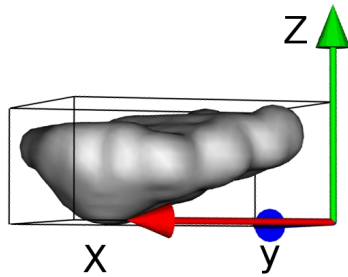
(b) Final : simulé



(c) Final : MEB

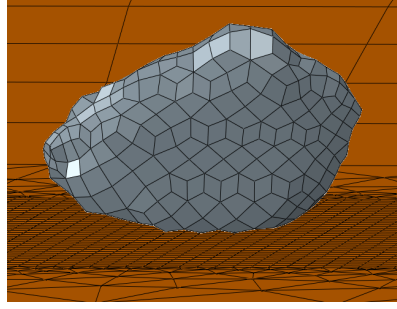
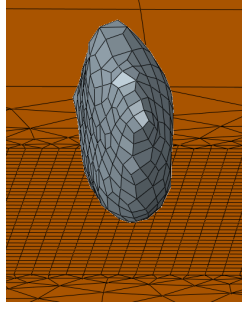


(d) Final : simulé

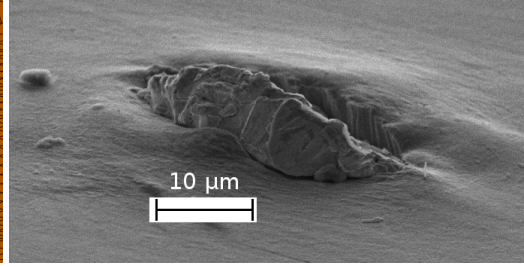
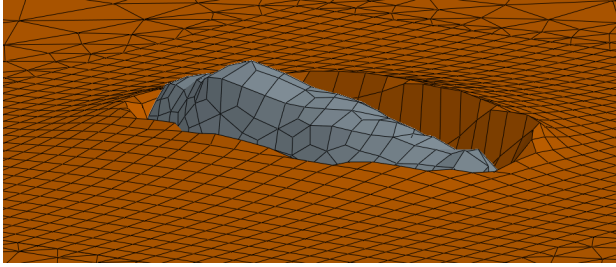


(e) Final : MTX

FIGURE VI.9 – Comparaison directe d'un splat simulé (classe de forme 2, B_1 , B_2 , $B_3 = 13,1, 10,8, 10,8 \mu m$, vitesse $578 m s^{-1}$) avec des splats observés au MEB et par microtomographie.

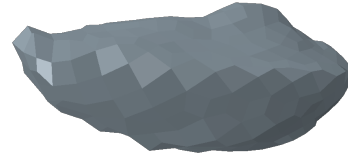


(a) Etat initial

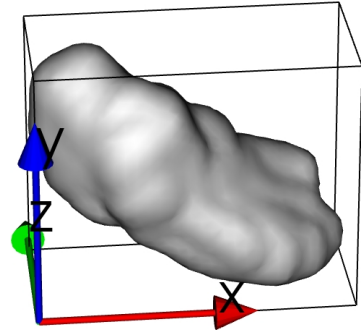
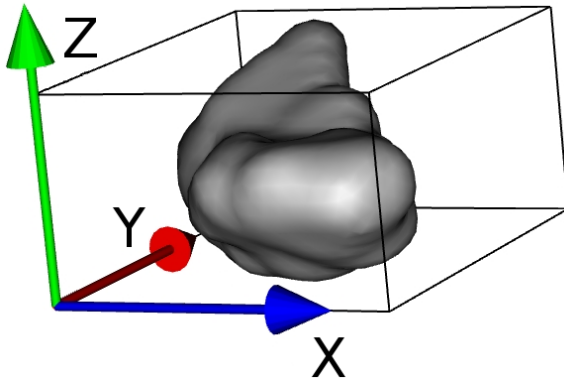


(b) Final : simulé

(c) Final : MEB



(d) Final : simulé



(e) Final : MTX

FIGURE VI.10 – Comparaison directe d'un splat simulé (classe de forme 4, $B_1, B_2, B_3 = 13, 7, 7, 7, 7 \mu m$, vitesse $454 ms^{-1}$) avec des splats observés au MEB et par MTX.

[66]). De plus, il est possible que les splats observés, à la différence de ceux obtenus par calcul (simulant des impacts parfaitement isolés), ne soient pas assez espacés pour garantir l'absence d'interaction entre les deux impacts. Dans ce cas, il serait donc logique de mesurer une pénétration moins élevée qu'en l'absence d'interaction.

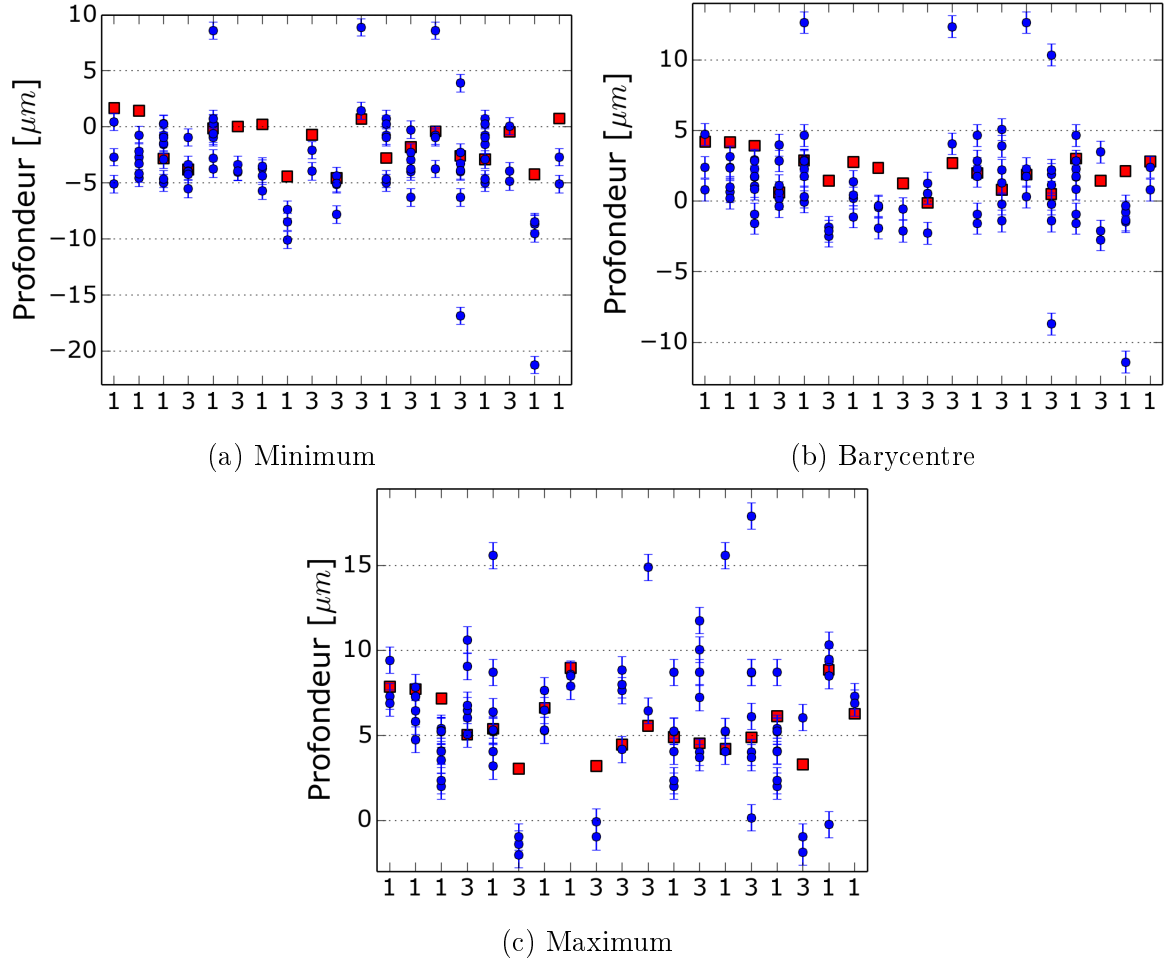


FIGURE VI.11 – Comparaison des trois pénétrations entre splats simulés (carrés rouges) et observés (points bleus) : (a) minimale, (c) maximale et (b) au barycentre. Les barres d'erreur correspondent à l'incertitude sur les mesures de distance, quantifiée à ± 1 pixel, soit à $\pm 0,77 \mu m$.

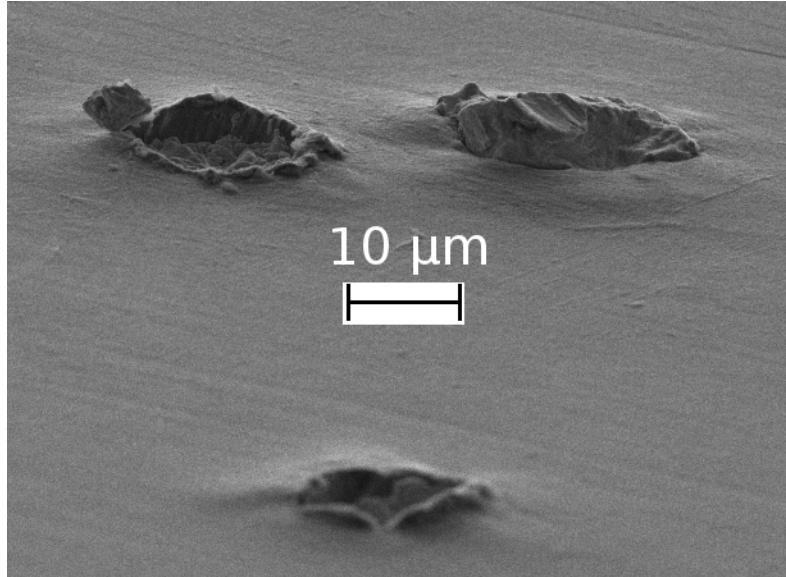


FIGURE VI.12 – Vue MEB en perspective de splats Ta sur Cu.

VI.3 Splats de Ta sur Ta

Si pour les splats Ta sur Cu les deux matériaux présentent des nombres atomiques bien différents et, en conséquence, un bon contraste dans les images microtomographiques, cela n'est pas le cas pour les splats Ta sur Ta. L'homogénéité du nombre atomique dans un échantillon de splats Ta sur Ta ne permet pas, en effet, de repérer les splats. Les méthodes utilisées pour le cas Ta sur Cu ne sont donc pas applicables ici.

En s'inspirant du travail [11], où du gallium a pu être infiltré dans les frontières entre les particules dans un dépôt cold spray d'aluminium, il a été envisagé de créer une couche de contraste entre le substrat et les splats. À cette fin, différentes techniques ont été préconisées et mises en place.

Le substrat consistait en un dépôt cold spray de Ta sur Cu d'une épaisseur d'environ $800\ \mu\text{m}$. Afin de reconstituer les conditions d'impact sur substrat plan des simulations EF, l'échantillon a été poli « miroir ». Après polissage, l'épaisseur de dépôt était encore supérieure à $500\ \mu\text{m}$. Selon les estimations des simulations EF (cf. § V.2), cela est largement suffisant pour éviter l'interférence du cuivre sous-jacent sur la déformation des nouveaux splats.

Pour le revêtement de contraste, les caractéristiques suivantes sont recherchées :

- Contraste avec le tantale en MTX : par définition, c'est la première propriété requise.
- Épaisseur : elle doit être, d'une part, minimisée pour diminuer l'effet du revêtement sur la déformation et, d'autre part, suffisante pour que la couche soit visible sur les images MTX. L'épaisseur idéale est estimée être de l'ordre de la résolution de la MTX ($0,77\ \mu\text{m}$).
- Adhérence : nécessaire pour que le revêtement ne soit pas enlevé en cours de projection. Les conditions ici sont assez sévères, à cause de la vitesse du gaz et de l'endommagement produit par les particules incidentes.

Comme on verra plus loin, il est difficile d'obtenir un revêtement qui satisfasse simultanément ces trois conditions, qui concernent le choix du matériau et du procédé. Des trois conditions posées, la première requiert un matériau de densité différente du tantale pour créer le contraste en MTX. Les deux autres, en revanche, demandent que le procédé utilisé soit capable d'appliquer une couche à la fois fine ($1\ \mu\text{m}$ environ) et adhérente.

VI.3.1 Revêtement du substrat

En premier lieu, des essais ont été réalisés pour appliquer une couche contrastante sur la surface du substrat (dépôt de tantale « cold spray », poli « miroir »), avant la projection des splats. Les différentes méthodes utilisées, brièvement décrites dans ce qui suit, pour différentes raisons n'ont pas donné des résultats satisfaisants.

Dépôt électrolytique

L'échantillon est immergé dans un bain contenant des ions métalliques en solution, à 80 °C. Une tension continue est appliquée entre la cathode (échantillon) et l'anode (plaquette immergée dans le bain, du même métal présent en solution), ce qui permet la migration et le dépôt des ions à la surface de l'échantillon. L'épaisseur de la couche ainsi créée est fonction du temps de traitement.

Deux types de revêtements ont été essayés, en cuivre et en nickel. Ce procédé produit des dépôts d'épaisseur non uniforme et de faible adhérence. Il n'a, donc, pas été retenu pour la suite.

Traitement thermique

Le traitement thermique du tantale sous atmosphère oxydante (air) cause la croissance d'une couche d'oxyde. Selon la température choisie pour le traitement, différents oxydes sont formés. Les mécanismes d'oxydation du tantale et les oxydes qui peuvent en résulter sont exposés dans le chapitre 1. Quatre combinaisons température-durée ont été essayées : 24h et 48h à 350 °C, 8h à 450 °C et 8h à 500 °C. Dans tous les cas, une couche d'oxyde d'épaisseur variable a été obtenue. Lors de la projection de la poudre par cold spray, la couche d'oxyde constitue une barrière dure et fragile, qui empêche l'adhésion des particules. L'échantillon ne montre au MEB que des cratères marquant l'impact de particules que n'ont pas adhéré. Les quelques particules qui ont adhéré ne sont, en outre, pas représentatives des impacts sur du tantale non oxydé. Cette technique ne donne donc pas les résultats souhaités et a été mise à l'écart.

Coulage en bande

La troisième méthode essayée, le coulage en bande, est décrite au chapitre II. De la poudre nanométrique de cuivre Alfa Aesar - 625 mesh, APS 0,5 - 1,5 μm a été utilisée pour la création de la suspension. Les composants sont : poudre 6 g, éthanol à l'œil, PEG (polyéthylène glycol) 0,35 g et PVB (polyvinyle de butyral) 1,4 g. La suspension est traitée durant 24h dans un mélangeur « Turbula », afin de l'homogénéiser et en disperser les éventuels agrégats. Elle est, ensuite, étalée sur une plaquette de tantale cold spray poli « miroir », à l'aide de la machine pour coulage en bande « Elcometer 4340 automatic film applicator ». La dernière étape consiste en un traitement thermique, effectué dans un four à atmosphère contrôlée. Un premier palier (2 heures à 400 °C) sous air permet d'éliminer les composantes organiques. L'atmosphère est alors changée en argon + 5% hydrogène, pour éviter l'oxydation. Un deuxième palier (2 heures à 800 °C) est alors appliqué pour fritter la poudre.

La technique permet de réaliser des couches de faible épaisseur (qui n'a pas été mesurée) sur le substrat avant projection. Cependant, l'adhérence du dépôt appliqué par coulage en bande n'est pas suffisante. Celui-ci ne peut résister aux conditions sévères de projection et se détache entièrement de l'échantillon.

Une différence considérable existe entre les coefficients de dilatation thermique des deux matériaux (Cu : $16,8 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$; Ta : $6,5 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$). Cela se traduit par la création,

lors du traitement thermique, de contraintes mécaniques entre la couche et le substrat, qui pourraient être à l'origine de la faible adhérence. Un deuxième essai a été tenté, en utilisant cette fois de l'encre à base argent utilisé en microscopie électronique, dont la composition exacte n'est pas connue. L'argent présente un coefficient de dilatation thermique plus proche de celui du tantale ($\text{Ag} : 6 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$) et a une température de fusion moins élevée, ce qui permet de limiter le deuxième palier à 680°C . Malheureusement, les résultats ne sont pas meilleurs : un détachement de la couche métallique est constaté pendant projection.

VI.3.2 Revêtement de la poudre

Les méthodes essayées pour le revêtement du substrat ne se sont pas révélées adaptées au cas présent. Aucune technique n'arrive à satisfaire simultanément les trois conditions susmentionnées : contraste, épaisseur, adhérence. Une autre approche consiste à appliquer une couche contrastante aux particules de la poudre, avant projection. Une entreprise spécialisée dans la fabrication et le traitement des poudres (Lifco/Saint Etienne) a été sollicitée pour résoudre la question. Il a été décidé d'enrober les particules de tantale dans une couche de fer, déposée par « Chemical Vapor Deposition » (CVD) sur lit fluidisé. La technique est illustrée au chapitre II.

La poudre a été, d'abord, observée au MEB (en fig. VI.13) et montre des caractéristiques particulières. De gros agglomérats de particules sont visibles et mesurent, parfois, plusieurs centaines de μm . Comme montré dans l'agrandissement, le dépôt de fer agit comme un ciment entre les particules.

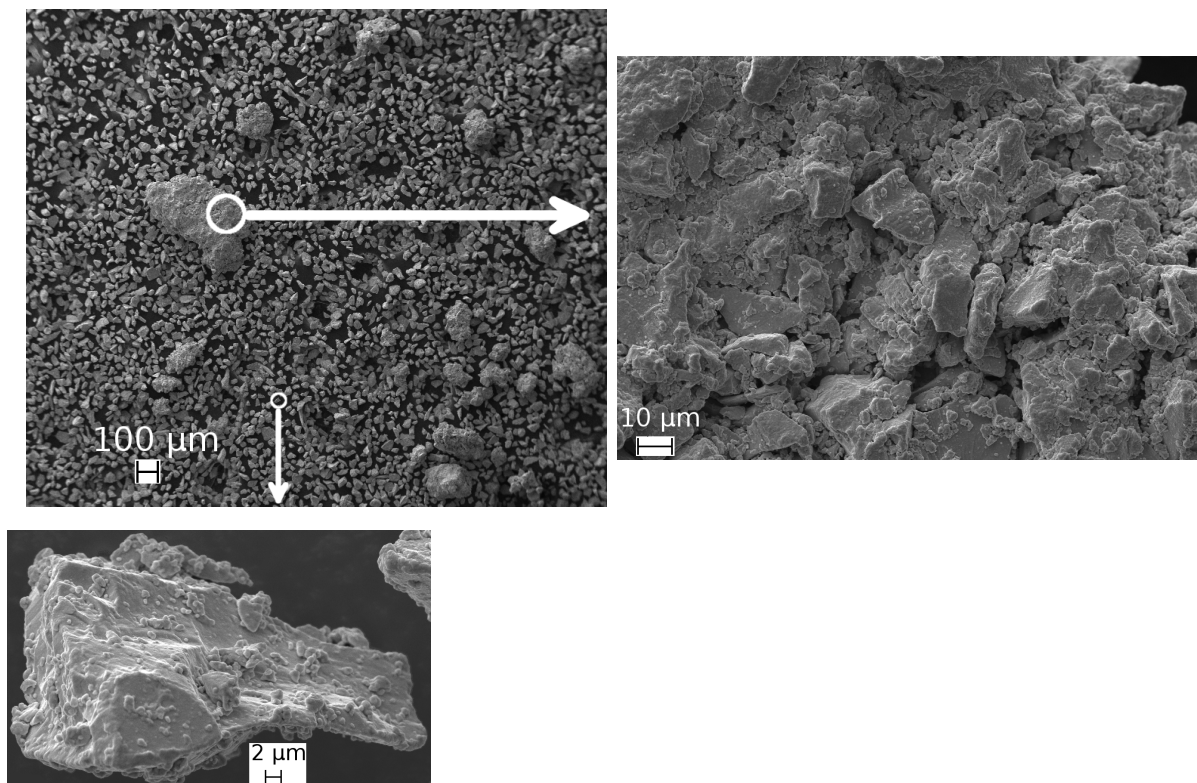


FIGURE VI.13 – Vues au MEB de la poudre revêtue, à différents agrandissements.

Des mesures au granulomètre laser ont été effectuées, afin de comparer la poudre d'origine et la revêtue. Les répartitions granulométriques sont montrées en fig. VI.14. La poudre revêtue provenait de deux lots de poudre de Ta (avec des granulométries légèrement

différentes) et sa répartition granulométrique se situe entre les deux. Une différence est remarquable et s'accorde aux observations au MEB : la poudre LIFCO présente plus de particules de grande taille ($> 70 \sim 80 \mu m$).

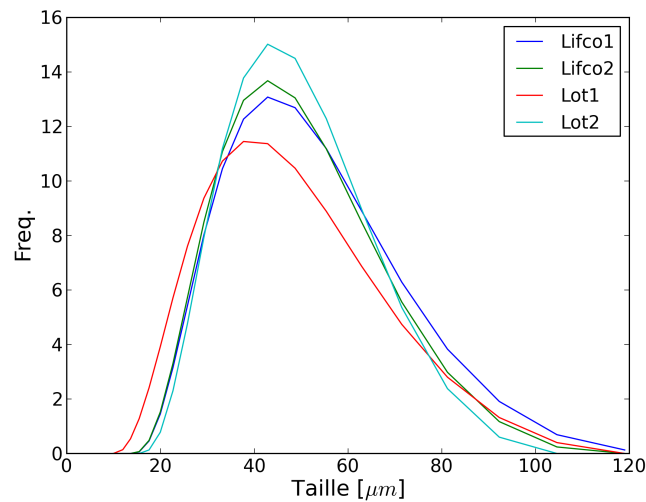


FIGURE VI.14 – Comparaison des granulométries laser de la poudre avant (provenant de deux lots différents) et après revêtement (« Lifco » en légende).

L'observation de la poudre en coupe au MEB, montrée en fig. VI.15, révèle les caractéristiques du revêtement en fer. Celui-ci n'est pas toujours homogène et présente une épaisseur d'environ $0,5 \mu m$, qui peut varier de zéro à $1 \mu m$. En correspondance des irrégularités de la surface de la particule, le revêtement peut être plus épais. La surface des particules présentait (cf. fig. VI.13) des irrégularités absentes dans la poudre d'origine. La vue en coupe incite à penser que cela pourrait être dû encore à l'agglomération des particules, cette fois à petite échelle et en petit nombre. La couche en fer servirait alors de liant entre une particule et d'autres plus petites (probablement des débris dus au procédé de fabrication de la poudre), qui se colleraient à la surface de la première. La présence des ces particules « satellites » est visible en fig. VI.15.

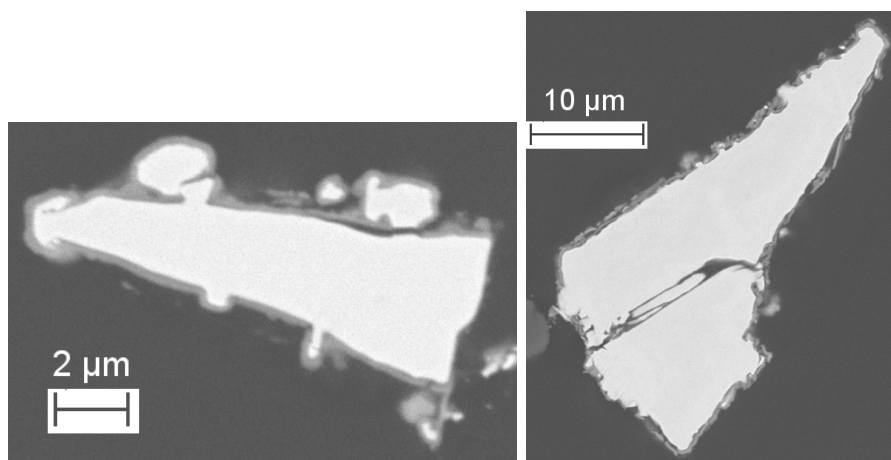


FIGURE VI.15 – Vues au MEB en coupe de la poudre revêtue.

De projections de type « single splats » ont été réalisées et les échantillons résultants ont été observés au MEB avant de subir la préparation pour la MTX. La figure VI.16 présente une vue par dessus. L'image en électrons rétrodiffusés (b) révèle que la majorité

des impacts n'ont laissé qu'un cratère avec, parfois, des traces du revêtement de fer (visible en foncé). Ce dernier pourrait, en effet, faire barrière et empêcher ou rendre plus difficile l'accrochage des splats. Certaines particules adhèrent, néanmoins, au substrat et sont montrées en fig. VI.17. Le destin du revêtement de fer est variable. Dans certains cas, comme pour la particule à gauche, il arrive à résister à l'impact et il reste adhérent à la particule de tantale, au moins dans sa partie émergente. Dans d'autres cas il est enlevé pendant l'écrasement de la particule. Cela est montré dans la figure à droite, où le revêtement a disparu, à l'exception de quelques morceaux encore visibles au centre de la particule.

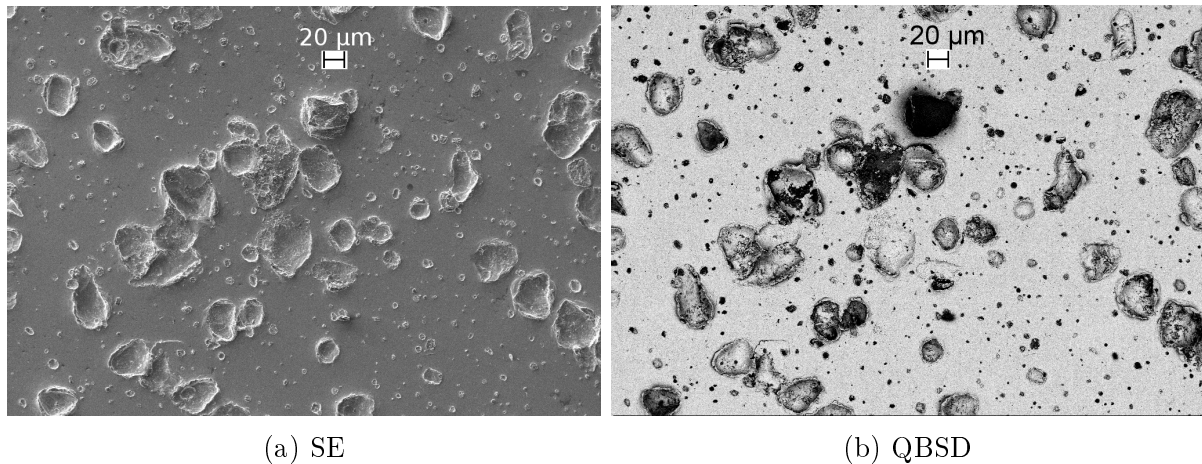


FIGURE VI.16 – Vues de dessus au MEB, en électrons secondaires (a) et en électrons rétrodiffusés (b), d'un échantillon de type « single splat » avec la poudre revêtue.

Le nombre initial limité de splats et leur adhérence réduite, qui en ont fait se détacher quelques-uns lors de la découpe à la scie à fil diamanté, font qu'à la fin il n'en reste que deux dans tout l'échantillon.

La figure VI.18, contenant un détail d'une section d'image MTX, montre un des rares splats Ta revêtu sur Ta. Il s'agit probablement d'un cas où le revêtement de fer a été enlevé, car la frontière avec le substrat est presque invisible. L'absence de contraste empêche une segmentation correcte de l'image. Le résultats ne sont donc pas exploitables dans le cadre de cette étude.

Deux leçons peuvent être tirées de cette expérience, qui permettront de l'améliorer et la rendre exploitable dans le futur. D'une part, il faudrait utiliser des paramètres de projection plus énergétiques, pour augmenter la vitesse des particules et la probabilité d'accrochage. D'autre part, il serait envisageable d'avoir recours à la laminographie, une technique dérivée de la MTX, qui permet l'observation d'échantillons plats et fins. Dans ce cas, l'aire observée serait augmentée et la perte des splats en cours de découpe serait limitée aux bords de l'échantillon.

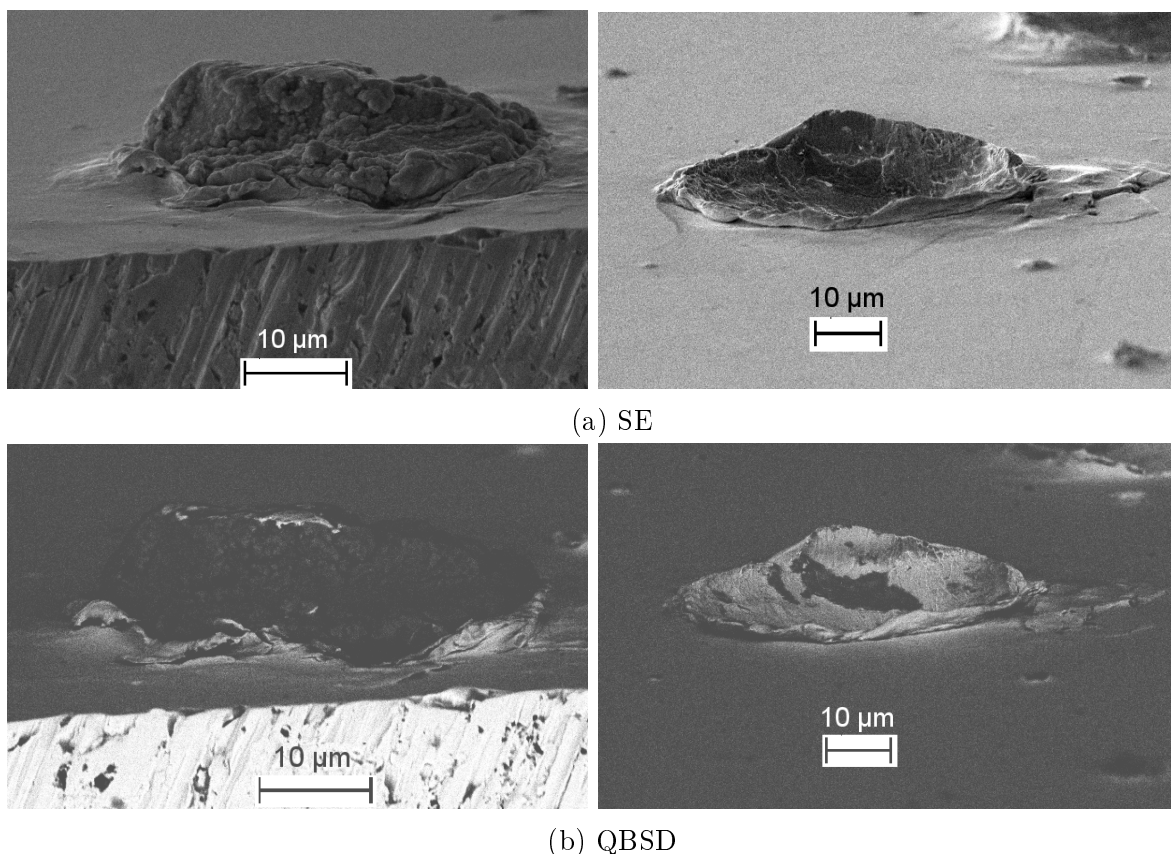


FIGURE VI.17 – Vues au MEB en perspective, en électrons secondaires (a) et en électrons rétrodiffusés (b), d'un échantillon de type « single splat » avec la poudre revêtue.

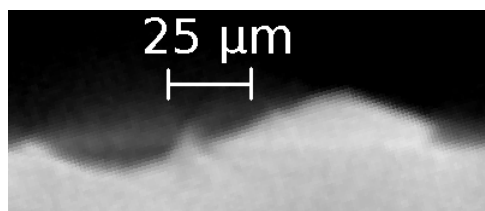


FIGURE VI.18 – Section d'une image 3D issue de la MTX de l'échantillon de fig. VI.17.

VI.4 Conclusions

La validation s'est concentrée sur les simulations d'impacts individuels, plutôt que sur le modèle d'empilement, qui nécessite encore du développement.

Les deux types de splats (Ta sur Cu et Ta sur Ta), exigeant des méthodes d'observation expérimentale différentes, ont été traités séparément. Les premiers, en profitant de l'hétérogénéité des deux matériaux, ont pu être directement observés par MTX. Comme déjà pour la poudre, le traitement des images microtomographiques a porté à la constitution d'une bibliothèque 3D des splats Ta sur Cu. Ceux-ci ont été comparés, de façon statistique mais aussi individuellement, aux simulations correspondants sans qu'aucune divergence évidente n'apparaisse.

Le cas des splats Ta sur Ta est compliqué du fait de l'homogénéité du matériau, qui empêche l'utilisation directe de la MTX. Pour ne pas renoncer à une caractérisation 3D par MTX, différentes méthodes visant à apporter une couche de contraste entre particule et substrat ont été mises en place. Parmi les techniques essayées, le revêtement de la poudre (couche de Fe appliqué par CVD sur lit fluidisé) avant projection s'est révélé la

seule méthode exploitable. Le petit nombre de splats revêtus dans les images MTX et la faiblesse du contraste s'opposent à la construction d'une bibliothèque 3D des splats Ta sur Ta. La validation des impacts sur tantale reste, donc, dans les perspectives de suite à l'étude.

Chapitre VII

Conclusions et perspectives

VII.1 Conclusion générale

Les travaux menés dans cette thèse avaient pour but la mise en place d'une modélisation originale du procédé cold spray, focalisée sur la prédiction de la microstructure du dépôt pour différentes conditions de projection. Trois axes principaux de recherche (caractérisation 3D de la poudre, simulation d'impacts par éléments finis et simulation d'empilements des particules), fortement imbriqués les uns aux autres, ont été développés. Pour chacun des trois axes, des approches originales ont été mises en place. L'objectif ambitieux était de créer un modèle d'empilement à partir de l'observation expérimentale et de la simulation d'impacts par éléments finis (EF). Cette nouvelle approche de la modélisation du procédé trouve son originalité dans le couplage de simulations par éléments finis avec une modélisation d'empilement simplifiée, dite morphologique. En parallèle au développement de cette approche, une étude expérimentale a été menée pour nourrir les modèles et les valider.

Un procédé innovant de caractérisation morphologique de la poudre en 3D, utilisant la microtomographie par rayons X (MTX), a été développé. Le traitement des images en résultant a permis d'isoler les particules individuelles, regroupées dans une bibliothèque 3D d'environ 18000 objets. La taille et la forme ont été caractérisées quantitativement, à travers 14 mesures morphologiques. La richesse des informations obtenues va bien au delà des possibilités offertes par des techniques d'observation plus classiques comme, par exemple, la granulométrie laser ou l'observation au microscope électronique à balayage (MEB). L'analyse en composantes principales (ACP) a été utilisée, ensuite, pour la réduction dimensionnelle de l'espace des mesures. Cela a permis de simplifier l'ensemble des données, tout en minimisant la perte d'information. De plus, l'emploi de deux ACP distinctes, respectivement restreintes aux paramètres de taille et de forme, a conduit à la définition de deux groupes de descripteurs séparés (les composantes principales des deux analyses). Un seul paramètre s'est avéré être suffisant pour représenter la taille des particules. Pour leur forme, en revanche, trois paramètres ont dû être retenus. Finalement, la méthode de partitionnement des données dite « K-means » a été utilisée pour la répartition des particules en classes de forme. La technique a été appliquée aux trois premières composantes principales, résultantes de l'ACP de forme. Un nombre de 6 classes (7 si l'on ajoute le groupe des particules précédemment isolées) a été retenu comme meilleur compromis entre simplicité et précision du classement. La classification constitue une aide à l'échantillonnage des particules lors des simulations EF.

Des simulations EF d'écrasement des particules ont été implémentées en utilisant le logiciel Abaqus en approche lagrangienne. Les calculs thermomécaniques sont fondés sur l'utilisation des modèles de Johnson-Cook (plasticité) et l'équation d'état de Mie-

Gruneisen. Des simulations en 2D, avec des particules idéalisées (sphériques ou ellipsoïdales), ont permis l'évaluation des effets de certaines variables, relatives à la simulation (taille et densité du maillage) et au procédé (forme et vitesse des poudres, rugosité du substrat). L'écrasement et le frottement ont fait l'objet de deux études particulières qui ont conduit à leur estimation. Le premier est à la base des simulations d'impact sur substrat en tantale cold spray, pour représenter les impacts sur particules déjà déposées. L'étude du frottement, bien que manquant de conclusions tranchées, semble pencher vers des faibles valeurs du cisaillement critique. L'extension du modèle en 3D a permis, avec l'utilisation d'outils de maillage adaptés, de réaliser des simulations d'écrasement des particules réelles (en provenance de la bibliothèque 3D). L'automatisation de ces simulations visait à accroître le nombre des cas étudiés afin d'acquérir une statistique représentative des caractéristiques de la poudre. Toutefois, face aux problèmes de robustesse rencontrés, le nombre de simulations réussies s'est trouvé limité. On est convaincu que l'utilisation de l'approche eulérienne, avec un « vrai » remaillage, pourrait donner des simulations plus robustes et atteindre l'objectif visé.

La validation s'est concentrée sur la simulation d'impacts individuels. Le modèle d'empilement, nécessitant encore de développement, n'est pas encore prêt pour cette étape. Les deux types de splats (Ta sur Cu et Ta sur Ta), exigeant de méthodes d'observation expérimentale différentes, ont été traités séparément. Les premiers, en profitant de l'hétérogénéité des deux matériaux, ont pu être directement observés par MTX. Comme déjà fait pour la poudre, cela a porté à la constitution d'une bibliothèque 3D des splats Ta sur Cu. Ceux-ci ont été comparés, de façon statistique mais aussi individuellement, aux cas simulés sans qu'aucune divergence évidente n'apparaisse. Le cas des Ta sur Ta est, en revanche, compliqué par l'homogénéité du matériau, qui empêche l'utilisation directe de la MTX. Pour ne pas renoncer à la caractérisation 3D, différentes méthodes visant à apporter une couche de contraste entre particule et substrat ont été essayées. Le revêtement de la poudre (couche de fer appliqué par dépôt chimique en phase vapeur (CVD) sur lit fluidisé) avant projection s'est révélé la seule méthode exploitable dans le contexte du cold spray. Le petit nombre de splats revêtus dans les images MTX et la faiblesse du contraste n'ont pas permis la construction d'une bibliothèque 3D des splats Ta sur Ta. La validation des impacts sur tantale reste donc dans les perspectives de l'étude.

L'homogénéité du dépôt a été vérifiée par des mesures de dureté, effectuées à différentes distances de l'interface dépôt-substrat. Les bases d'un modèle d'empilement, fondé sur l'utilisation des résultats des simulations EF, ont été donc jetées. D'abord, il a fallu utiliser et adapter des méthodes d'interpolation des données EF. La triangulation de Delaunay a été retenue pour étendre au continuum les champs de déplacement discrétisés. La construction d'un dépôt cold spray a été simulée par un procédé itératif où les particules s'écrasent, une à une, sur le substrat. Le modèle a été mis en place en 2D, par simplicité d'implémentation. Les données EF d'entrée, par conséquent, étaient tirées d'une série spéciale de simulations d'impact en 2D de sphères. Une implémentation préliminaire, très simplifiée, du modèle d'empilement utilisait seulement les déplacements verticaux. Le modèle complet a été développé, d'abord, en utilisant une discrétisation spatiale en grille. L'accumulation des erreurs dues à cette discrétisation a incité à la mise en œuvre d'une nouvelle approche, sans discrétisation spatiale. Le développement du modèle d'empilement qui, dans son état actuel n'est pas suffisamment mûr pour l'application à des cas pratiques, n'a pas pu se poursuivre dans le cadre de cette thèse. La valeur de ces travaux est à chercher dans la mise en place des méthodes qui sont à la base d'une nouvelle approche de la modélisation d'empilement, plutôt que dans les résultats encore partiels.

Si la modélisation a occupé une place centrale dans l'ensemble des travaux menés, l'expérience n'a pas été négligée. Les efforts pour que les simulations EF se rapprochent

les plus possible de la réalité en témoignent : utilisation des particules réelles et des mesures expérimentales des vitesses en vol, étude du frottement avec particules revêtues et enfin, les efforts pour la validation des simulations d'impacts.

L'objectif final a été partiellement atteint. Si la caractérisation morphologique de la poudre peut être considérée comme complète et valide, la robustesse limitée des simulations EF, d'une part, et les problèmes de la simulation d'empilements, d'autre part, indiquent la nécessité d'études ultérieures.

VII.2 Perspectives

Les causes du manque de robustesse des simulations EF sont à chercher principalement dans l'outil de remaillage ALE (« Arbitrary Lagrangian Eulerian ») d'Abaqus et dans l'approche de type lagrangien choisi, qui se sont révélés très sensibles au choix du maillage initial et des paramètres de remaillage. Le recours à l'approche eulérienne, en utilisant Abaqus ou un autre logiciel (Forge), pourrait résoudre, en partie, ces problèmes. De plus, l'algorithme de remaillage ne devrait pas être limité à la seule translation des nœuds mais devrait permettre le changement de topologie et accomplir ainsi un remaillage complet.

Le modèle d'empilement, dans sa dernière version (approche vectorielle), présente des problèmes liés à la dispersion et au croisement des frontières entre splats. Une cause possible pourrait se trouver dans la méthode d'interpolation de la triangulation de Delaunay utilisée. Il reste à le vérifier et à corriger ce comportement. Une autre amélioration du modèle porte sur la prise en compte des effets de rugosité. Trois comportements types ont été identifiés, à l'aide des simulations EF. L'inclusion de ces effets dans le modèle d'empilement pourrait mitiger les conséquences d'une des hypothèses fortes du modèle actuel, c'est-à-dire le fait que des simulations EF sur plan sont utilisées pour l'empilement des particules qui s'écrasent sur rugueux.

Une fois que le modèle d'empilement sera mis au point, son extension au 3D est envisagée. Cela est une étape importante car cette extension permettrait l'utilisation des simulations EF des particules réelles dans le modèle d'empilement et, par conséquent, la simulation d'un dépôt plus vraisemblable. Il rendrait aussi possible la validation du modèle d'empilement, par comparaison de sections 2D du dépôt simulé avec les observations expérimentales (vues au MEB en coupe) d'un dépôt réel (attaqué chimiquement pour mettre en évidence sa composition en splats).

Les applications possibles pour un modèle d'empilement complètement développé sont diverses dans le domaine du cold spray. Il pourrait guider dans l'optimisation des poudres pour une application donnée. Par exemple, il pourrait être utilisé pour trouver la poudre la plus adaptée au dépôt sur une géométrie complexe, sur un substrat poreux ou encore structuré par laser. La simulation de la projection de poudres composites fait aussi partie des applications potentielles du modèle. Elle trouverait un fort intérêt, par exemple, dans le cadre de la réparation de pièces d'aluminium où souvent la poudre métallique est mélangée à une poudre d'oxyde (alumina) pour augmenter l'effet compactifiant des impacts.

Le procédé de fabrication additive par cold spray, actuellement à ses balbutiements, devrait bénéficier, à terme, du modèle développé dans cette thèse. D'autres développements lui permettront aussi de s'appliquer au delà du cold spray. Par exemple, la prise en considération de transformations de phase ouvrirait la porte à d'autres procédés de la famille de projection thermique. Plus généralement, la philosophie derrière la modélisation d'empilement développée dans cette thèse pourrait être appliquée dans tout procédé où l'apport de matière se fait par accumulation de matière sous forme divisée (de la poudre par exemple), celle pouvant subir une certaine transformation.

Enfin, le couplage avec un modèle de comportement pourrait permettre l'estimation de certaines propriétés physiques (par exemple, les conductivités thermique et électrique), dépendant de la microstructure du dépôt.

Bibliographie

- [1] J. VILLAFUERTE, éd. *Modern Cold Spray : Materials, Process, and Applicaitons*. 1^{re} éd. in press. New York, USA : Springer, 2015.
- [2] P. FAUCHAIS, J.V.R. HEBERLEIN et M.I. BOULOS. *Thermal Spray Fundamentals. From Powder to Part*. 1^{re} éd. New York, USA : Springer, 2014.
- [3] V.K. CHAMPAGNE, éd. *The cold spray material deposition process : Fundamentals and Applications*. Woodhead publishing, 2010.
- [4] A. Papyrin et AL. *Cold spray technology*. Kidlington : Elsevier, 2007, p. 328.
- [5] F. RALETZ. « Contribution au développement d'un procédé de projection dynamique à froid poud pour la réalisation de dépôt de nickel ». Thèse de doctorat. Université de Limoges, 2005.
- [6] K. ICHIMURA. « Mechanical properties of aluminium deposition produced by low pressure type cold spray technique ». PhD thesis. University of Sendai (Japan), 2007.
- [7] T. SCHMIDT et al. « From particle acceleration to impact and bonding in cold spray ». In : *J. Therm. Spray Tech.* 18 (5-6 2009), p. 794.
- [8] E. MAIRE et al. « Tomographie à rayons X appliquée à l'étude des matériaux ». In : *Techniques de l'Ingénieur* (2004).
- [9] M. L. ZANI-DEMANGE. « La tomographie fait un pas vers la mesure ». In : *Mesures* 802 (fév. 2008). URL : www.mesures.com.
- [10] G. ROLLAND et al. « Microstructures of Cold-Sprayed Coating Investigated by X-Ray Microtomography ». In : *Thermal Spray : Global Solutions for Future Applications*. ITSC2010. (Singapore, 3 mar. 2010). Thermal Spray Bulletin. 2010, p. 140–147.
- [11] L. GILLIBERT et al. « 3D multiscale segmentation and morphological analysis of x-ray microtomography from cold-sprayed coatings ». In : *Journal of Microscopy* 248 (2 2012), p. 187–199.
- [12] O. AMSELLEM et al. « Three-Dimensional Simulation of Porosity in Plasma-Sprayed Alumina using Microtomography and Electrochemical Impedance Spectrometry for Finite Element Modeling of Properties ». In : *Journal of Thermal Spray Technology* 21 (2012), p. 193–201.
- [13] E.PARRA-DENIS et al. « 3D complex shape characterization by statistical analysis : application to Al alloys ». In : *Materials characterization* 59 (3 2008), p. 338–343.
- [14] E.PARRA-DENIS, C. DUCOTTET et D. JEULIN. « A 3D image analysis of intermetallic inclusions ». In : *Int. J. Microstructure and Material Properties* 4 (2 2009), p. 217–230.

- [15] M. GRUJICIC et al. « Computational analysis of the interfacial bonding between feed-powder particles and the substrate in the cold-gas dynamic-spray process ». In : *App. Surf. Sci.* 219 (2003), p. 211–227.
- [16] G. LI, X.F. WANG et W.Y. LI. « Effect of different incidence angles on bonding performance in cold spraying ». In : *Trans. Nonferrous Met. Soc. China* 17 (2007), p. 116–121.
- [17] P. KING et M. JAHEDI. « Relationship between particle size and deformation in the cold spray process ». In : *App. Surf. Sci.* 256 (6 2010), p. 1735–1738.
- [18] R. GHELICI et S. Bagherifard M. Guagliano M. VERANI. « Numerical simulation of cold spray coating ». In : *Surf. Coat Tech.* 205 (23-24 2011), p. 5294–5301.
- [19] S. YIN et al. « Deposition Features of Ti Coating Using Irregular Powders in Cold Spray ». In : *J. Therm. Spray Tech.* 23 (6 2014), p. 984–990.
- [20] A. MANAP, T. OKABE et K. OGAWA. « Relationship between particle size and deformation in the cold spray process ». In : *Proc. Eng.* 10 (2011), p. 1145–1150.
- [21] W.Y. LI, S. YIN et X.F. WANG. « Numerical investigations of the effect of oblique impact on particle deformation in cold spraying by the SPH method ». In : *App. Surf. Sci.* 256 (12 2010), p. 3725–3734.
- [22] F.F. WANG et al. « Prediction of critical velocity during cold spraying Based on a coupled thermomechanical eulerian model ». In : *J. Therm. Spray Tech.* 23 (1-2 2013), p. 60–66.
- [23] W.Y. LI et W. GIAO. « Some aspects on 3D numerical modeling of high velocity impact of particles in cold spraying by explicit finite element analysis ». In : *App. Surf. Sci.* 255 (2009), p. 7878–7892.
- [24] B. YILDIRIM, S. MUFTU et A. GOULDSTONE. « Modeling of high velocity impact of spherical particles ». In : *Wear* 270 (2011), p. 703–713.
- [25] P. KOFSTAD. *High temperature corrosion*. Elsevier Applied Science, 1988.
- [26] S.P. GARG et al. « The Oxygen-Tantalum System ». In : *J. Phase Eq.* 17 (1 1996), p. 63–77.
- [27] N. SCHÖNBERG. « An X-ray investigation of the Tantalum-Oxygen system ». In : *Acta Chem. Scand.* 8 (1954), p. 240–245.
- [28] R.E. PAWEL et J.J. CAMBPELL. « Stress measurements during the oxidation of tantalum and niobium ». In : *Acta Metall.* 14 (12 1966), p. 1827–1833.
- [29] C.M. WAYMAN et J. Van LANDUYT. « A study of oxide plate formation in tantalum. I : Growth characteristics and morphology ». In : *Acta Metall.* 16 (6 1968), p. 803–814.
- [30] R.E. PAWEL, J.V. CATHCART et J.J. CAMBPELL. « Oxide platelet formation in tantalum single crystals ». In : *Acta Metall.* 10 (2 1962), p. 149–160.
- [31] D.A. VERMILYEA. « The oxidation of tantalum at 50 – 300°C ». In : *Acta Metall.* 6 (3 1958), p. 166–171.
- [32] P.S. FOLLANSBEE et al. *High Strain Rate Compression Testing - The Hopkinson Bar*. 9^e éd. T. 8. Metals Park, OH, USA : ASM, 1985, p. 198–203.
- [33] S. R. CHEN et G. T. Gray III. « Constitutive Behavior of Tantalum and Tantalum-Tungsten Alloys ». In : *Metall and Mat Trans A* 27A (1996), p. 2994.

- [34] JOHNSON et COOK. « A constitutive model and data for metals subjected to large strains, high strain rates, and high temperatures. » In : *7th Int. Symp. on Ballistic*. 1983, p. 541.
- [35] S. RAHMATI et A. GHAEI. « The Use of Particle/Substrate Material Models in Simulation of Cold-Gas Dynamic-Spray Process ». In : *J. Therm. Spray Tech.* 23 (3 2014), p. 530–540.
- [36] S. YIN et al. « Numerical investigation on effects of interactions between particles on coating formation in Cold Spray ». In : *J. Therm. Spray Tech.* 18 (4 2009), p. 686–693.
- [37] X.L. ZHOU et al. « Deposition behavior of mixed binary metallic powders in cold spraying process ». In : *App. Surf. Sci.* 257 (2011), p. 10628–10633.
- [38] A. TRINCHI et al. « Copper Surface Coatings Formed by the Cold Spray Process : Simulations Based on Empirical and Phenomenological Data ». In : *J. Therm. Spray Tech.* 20 (5 2011), p. 986–991.
- [39] G. MATHERON. *Random Sets and Integral Geometry*. Wiley, 1974.
- [40] J. SERRA. *Image Analysis and Mathematical Morphology : Theoretical Advances*. Academic Press, 1988.
- [41] G. ROLLAND. « Elaboration et étude de l'endommagement de dépôts composites obtenus par projection dynamique par gaz froid (cold spray). Application aux contacts électriques ».
- [42] L. DECKER. « Modèles de structures aléatoires de type réaction-diffusion ». thèse. ENSM Paris, 1999.
- [43] S. BEAUVAIS. « Etude de l'influence de la porosité sur les propriétés électriques de dépôts réalisés par projection plasma ». thèse. ENSM Paris, 2003.
- [44] B. HENRY. « Relation contraintes-adhérence dans des dépôts d'inconel 625 élaborés par plasmaformage sur un substrat organique ». thèse. ENSM Paris, 2004.
- [45] L.L. DESCURNINGES. « Influence de l'oxydation des particules de poudres de tantale sur les propriétés des dépôts cold spray ». thèse. MINES-ParisTech, 2013.
- [46] Malvern Instruments Ltd. UK. *User Manual of the Masterseizer 3000*. MANO474. 2011.
- [47] National Institute of STANDARDS et TECHNOLOGY. *XCOM : Photon Cross Section Database*. 2010. URL : www.nist.gov/pml/data/xcom/index.cfm.
- [48] C. THIERY et J. L. GERSTENMAYER. « Tomographie à rayons X ». In : *Techniques de l'Ingénieur* (2002).
- [49] P. SOILLE. *Morphological image analysis : principles and applications*. 2nd. Berlin Heidelberg : Springer-Verlag, 2002, p. 399.
- [50] H.O. PIERSON. *Handbook of Chemical Vapor Deposition. Principles, Technology and Applications*. 2^e éd. Noyes Publications, 1999.
- [51] B.S. EVERITT et al. *Cluster Analysis*. 5^e éd. 111 River Street, Hoboken, NJ, USA : Wiley, 2011.
- [52] S. GUETTA. « Influence des conditions d'impact sur l'adhérence de cuivre projeté dynamiquement sur de l'aluminium ». thèse. MINES-ParisTech, 2010.
- [53] H. ASSADI et al. « Bonding mechanism in cold gas spraying ». In : *Acta Mater.* 15 (51 2003), p. 4379–4394.

- [54] M. YU et al. « Finite element simulation of impacting behavior of particles in cold spraying by eulerian approach ». In : *J. Therm. Spray Tech.* 21 (3-4 2012), p. 745–752.
- [55] DAVIDSON. *Fundamentals of Shock Wave Propagation in Solids*. 2^e éd. Springer, 2008.
- [56] ABAQUS. *Abaqus Analysis Manual*. 2000.
- [57] W.Y. LI et al. « Modeling aspects of high velocity impact of particles in cold spraying by explicit finite element analysis ». In : *J. Therm. Spray Tech.* 18 (5-6 2009), p. 921.
- [58] ANTOUN et al. *Spall Fracture*. Springer, 2003.
- [59] D. GIRAUD. « Etude des composantes mécanique et métallurgique dans la liaison revêtement-substrat obtenue par projection dynamique par gaz froid pour les systèmes "Aluminium/Polyamide 6,6" et "Titane/TA6V" ». thèse. MINES-ParisTech, 2014.
- [60] W. GOLDSMITH. *Impact*. Dover publications, 2001.
- [61] T. SCHMIDT et al. « Developement of a generalized parameter window for cold spray deposition ». In : *Acta Mater.* 54 (2006), p. 729–742.
- [62] R. CLIFT, J.R. GRACE et M.E. WEBER. *Bubbles, drops and particles*. 5^e éd. 111 fifth avenue, New York, NJ, USA : Academic press, 1978.
- [63] S. YIN et al. « Numerical study on the effect of substrate size on the supersonic jet flow and temperature distribution within the substrate in cold spraying ». In : *J. Therm. Spray Tech.* 21 (3-4 2012), p. 628–635.
- [64] G. R. JOHNSON. « Implementation of simplified constitutive models in large computer codes ». In : A. M. RAJENDRAN et T. NICHOLAS. *Dynamic constitutive/failure models*. Dayton, OH, USA : University of Dayton, 1988, p. 409.
- [65] S. P. MARSH. *LASL shock hugoniot data*. Berkley, CA, USA : Univ. of California Press, 1980.
- [66] S. RAHMATI et A. GHAEI. « The use of particle/substrate material models in simulation of cold-gas dynamic-spray process ». In : *J. Therm. Spray Tech.* 23 (3 2014), p. 530–540.

Publications

Publications avec comité de relecture

1. F.Delloro, H.Proudhon, M.Faessel, M.Jeandin, D.Jeulin, E.Meillot, L.Bianchi "A Morphological Approach to the Modeling of the Cold Spray Process". Pour être soumis à publication dans *Journal of Thermal Spray Technology* (2015), en préparation.
2. F. Borit, N. Fabrègue, G. Rolland, F.Delloro, M. Jeandin "Approche artistique de la projection thermique", *Galvano-Organo* (2015, sous presse).
3. Q. Blochet, F. Delloro, F. N'Guyen, F. Borit, D. Jeulin, M. Jeandin "Effect of the cold-sprayed aluminium coating-substrate interface morphology on bond strength for aircraft repair applications", *Journal of Thermal Spray Technology* (2015, sous presse).
4. D.Giraud, F. Delloro, F. Borit, M. Jeandin, C. Correia "Experimental and numerical analysis of titanium particle impact onto a Ti-6Al-4V substrate in cold spray", *Journal of Thermal Spray Technology* (2015, sous presse).
5. M. Jeandin, F. Borit, N. Fabrègue, F. Delloro, R. Maestracci, V. Bortolussi, F. Willot, D. Jeulin "Cold spray : cold case ?". Pour être soumis à publication dans *Surface and Coatings Technology* (2016), en préparation.

Actes de congrès avec comité de relecture

1. M. Jeandin, F. Borit, N. Fabrègue, F. Delloro, R. Maestracci, V. Bortolussi, F. Willot, D. Jeulin "Cold spray : cold case ?", *RIPT 2015 (Rencontres Internationales sur la Projection Thermique)*, 9-11 décembre 2015, Limoges (France).
2. F. Borit, N. Fabrègue, G. Rolland, F.Delloro, M. Jeandin "Approche artistique de la projection thermique : la promesse du cold spray", *TRICOAT IV-Finishair*, Besançon (France), 6-7 mai, M.Ruimi ed. (2015).
3. F. Delloro, M. Faessel, H. Proudhon, D. Jeulin, M. Jeandin, E. Meillot : "X-ray micro-tomography and modeling of cold sprayed coated powders", *ITSC 2014 International Thermal Spray Conference and Exhibition*, pp. 886-891 (2014).
4. F. Delloro, M. Faessel, H. Proudhon, D. Jeulin, M. Jeandin, E. Meillot : "A morphological approach to the modeling of the cold spray process", *ITSC 2014 International Thermal Spray Conference and Exhibition*, pp. 221-226 (2014).
5. Q. Blochet, F. Delloro, F. N'Guyen, F. Borit, M. Jeandin, K. Roche, G. Surdon : "Influence of spray angle on cold spray with Al for the repair of aircraft components", *ITSC 2014 International Thermal Spray Conference and Exhibition*, pp. 69-74 (2014).
6. Q. Blochet, F. Delloro, F. Borit, M. Jeandin, K. Roche, G. Surdon, "Effect of spray parameters on the Al cold-sprayed for the repair of aircraft components", *RIPT*

2013 (Rencontres Internationales sur la Projection Thermique), 11-13 décembre 2013, Limoges (France).

Méthodes morphologique et par éléments finis combinées pour une nouvelle approche de la modélisation 3D du dépôt par projection dynamique par gaz froid (« cold spray »)

Résumé : L'objectif principal de cette étude était de réaliser une modélisation du procédé cold spray, fondée sur l'observation expérimentale et sur des modèles physiques capables de prédire la microstructure du dépôt en fonction de la morphologie de la poudre et des paramètres de projection. Pour y arriver, les travaux se sont organisés autour de trois axes principaux de recherche : caractérisation de la poudre en 3D, simulations d'impact par éléments finis et modélisation d'empilement. Un procédé innovant de caractérisation morphologique de la poudre en 3D, utilisant la microtomographie par rayons X, a été développé. Le traitement des images résultantes a permis d'isoler les particules individuelles, regroupées dans une bibliothèque 3D d'environ 18000 objets. Leur taille et forme ont été caractérisées quantitativement. La méthode de partitionnement des données dite « K-means » a été utilisée pour la répartition des particules en 7 classes de forme. Le deuxième axe de recherche portait sur la simulation d'écrasement des particules, par la méthode des éléments finis (logiciel Abaqus, approche lagrangienne). L'utilisation d'outils de maillage adaptés a permis de réaliser des simulations d'écrasement des particules réelles (en provenance de la bibliothèque 3D). L'automatisation de ces simulations visait la possibilité d'en effectuer en grand nombre mais, face aux problèmes de robustesse rencontrés, le nombre de simulations menées à bien fut limité. Le troisième axe de recherche portait sur le développement d'un modèle d'empilement itératif, fondé sur l'utilisation des résultats des simulations d'écrasement. Ce modèle a été mis en place en 2D par simplicité. Différentes implémentations ont été essayées mais leur développement ne fut pas suffisamment abouti pour l'application à des cas pratiques. La validation des modèles s'est limitée aux simulations d'impact par éléments finis. Les deux types de splats (Ta sur Cu et Ta sur Ta), exigeant de méthodes d'observation expérimentale différentes, ont été traités séparément. Les premiers ont pu être directement observés par microtomographie et regroupés dans une bibliothèque 3D des splats Ta sur Cu. Ensuite, ils ont été comparés, de façon statistique mais aussi individuellement, aux correspondants simulés sans qu'aucune divergence évidente n'apparaisse. Le cas des Ta sur Ta est, en revanche, compliqué du fait de l'homogénéité du système qui empêche l'utilisation directe de la microtomographie. Bien que différentes méthodes visant à apporter une couche de contraste entre particule et substrat aient été essayées, la construction d'une bibliothèque 3D des splats Ta sur Ta n'a pas été possible. L'optimisation des poudres (choix de la granulométrie et de la forme, en vue d'une application donnée) est une des utilisations envisagées pour le modèle d'empilement, ainsi que la simulation de la projection de poudres composites (métal et oxyde). L'inclusion dans le modèle des transformations de phase ouvrirait la porte de la famille de la projection plasma ou de la fabrication additive. Plus généralement, la philosophie derrière la modélisation d'empilement développée dans cette thèse peut être appliquée à tout procédé où l'apport de matière est fait à partir d'une « poudre » subissant une certaine transformation. Enfin, le couplage avec un modèle de comportement pourrait permettre l'estimation de certaines propriétés physiques (par exemple, les conductivités thermique et électrique), dépendant de la microstructure du dépôt.

Mots clés : modélisation, dépôt, cold spray, éléments finis, morphologie, microtomographie

A new approach to 3D modeling of the cold spray process, combining morphological methods and finite element simulations

Abstract : This study on the cold spray process aimed at achieving an original coating build-up model, capable of predicting the resulting microstructure as a function of powder morphology and process parameters. The work focused on three main interrelated subjects : 3D powder characterization, simulation of individual impacts on a flat substrate by the finite element method and deposition build-up modeling. An innovative method based on microtomographical observations was used for 3D characterization of the powder. Image analysis allowed to separate single powder particles and to gather them into a 3D collection containing approximately 18 000 objects. Their size and shape were quantitatively measured. A cluster analysis method (K-means) was then applied to this data set to divide the particles into 7 classes based on their shape. The second main research topic consisted in performing particle impact simulations on a flat substrate by the finite element method (using the commercial software Abaqus). The use of dedicated meshing tools allowed to simulate the impact of real particles, as observed by microtomography. Scripting techniques were used to carry out a large number of these simulations but, due to limited robustness of the procedure, only few of them were successfully conducted. The third research area focused on the development of a deposition build-up model (in 2D to allow a simpler implementation). Data from finite element results were interpolated and used in an iterative simulation, where impacting particles were deposited one by one. Different approaches were tested but the development of the model could not be completed in the framework of this thesis. Model validation could be performed on finite element simulations. The two kinds of splats (Ta on Cu and Ta on Ta) were considered separately. Concerning the first, direct microtomographical imaging could be applied, due to the heterogeneity of materials. Splats were observed, individually separated and gathered in a 3D collection as done before with powder particles. Simulated and observed splats could then be compared on a statistical basis. No particular discrepancy was observed, confirming the impact simulation method used. The second kind of splats (Ta on Ta) was complicated by the homogeneity of the materials, preventing the use of microtomography. The deposition (before spraying) of a contrast layer between Ta substrate and Ta particle was tried by different techniques. The only method giving exploitable results was the chemical vapor deposition of a Fe layer onto the powder particles. However, the small number of adherent particles and the weak contrast obtained in the images prevented the use of the methods already applied to powder particles and Ta splats onto Cu. The optimization of powder granulometry and shape (towards a specific application) is one of the main expected applications of the deposition build-up model, together with the simulation of composite powders (typically, metal and oxide). The involvement of phase transformation phenomena into the model could extend its application to the whole family of thermal spray processes (plasma, HVOF, etc.) or to other additive manufacturing techniques. In general, the philosophy behind our modeling approach could be applied to every manufacturing/coating technique where the supply material is in powder form and undergoes a certain transformation during the process. Finally, the coupling of such a model with homogenization techniques would allow the prediction of macroscopic properties depending on deposit microstructure (e.g. thermal or electrical conductivity).

Keywords : modeling, deposition, cold spray, finite elements, morphology, microtomography